

**Fernmessung von Gasen und Dämpfen
in der Atmosphäre mit Lasern:
Konzentrationsverteilung und Ausbrei-
tung von Wasserdampf und Äthylen**

**DISSERTATION
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München**

**vorgelegt von
Walter Baumer
aus München**

München, Juli 1979



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551927_0023

**Fernmessung von Gasen und Dämpfen
in der Atmosphäre mit Lasern:
Konzentrationsverteilung und Ausbrei-
tung von Wasserdampf und Äthylen**

**DISSERTATION
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München**

**vorgelegt von
Walter Baumer
aus München**

München, Juli 1979

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther

2. Gutachter: Prof. Dr. H. W. Schrötter

Tag der mündlichen Prüfung: 31. Juli 1979



Zusammenfassung

Längst ist die Kontrolle wichtiger Luftverunreinigungen aus dem Stadium der "nur akademischen Problemstellung" herausgetreten und hat sich im Bewußtsein der heutigen Gesellschaft den angemessenen Stellenwert verschafft. Auf diesem Hintergrund besteht großes Interesse, konkrete Meßdaten zur Umweltanalyse zu bekommen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde zur Ermittlung von dreidimensionalen Konzentrationsverteilungen ein mit der Methode der differentiellen Absorption arbeitendes Lidargerät (DIAL) entwickelt. Bei diesem Verfahren wird ein Lichtpuls in die Atmosphäre emittiert und die zurückgestreute Strahlung als Funktion der Laufzeit registriert. Da das Licht von der zu bestimmenden Substanz in charakteristischer Weise absorbiert wird, kann durch Messung auf zwei verschiedenen Wellenlängen die Konzentration der Substanz in Abhängigkeit von der Entfernung angegeben werden. Die für das Lidarprinzip notwendige Lichtquelle wurde mit einem CO_2 -TEA-Laser realisiert. Dieser hat eine hohe Leistung und liefert demzufolge große Rückstreuintensitäten; allerdings haben CO_2 -Laser lange Pulsdauern (bis zu einigen μs) und lassen daher nur eine ungenügende Ortsauflösung zu. Deshalb wurde ein Verfahren entwickelt, mit Hilfe eines Plasmafunken den Laserpuls zu verkürzen.

Darüber hinaus war es möglich, bei der Auswertung durch eine Entfaltungsrechnung die exakte (vorher gemessene) Pulsform mit einzurechnen und die Ortsauflösung bis zum maximal möglichen Wert, der durch die zeitliche Rasterung des Speichersystems vorgegeben ist, zu steigern.

Mit dem Lidargerät wurden schließlich zwei Feldmeßkampagnen durchgeführt. Beim ersten Einsatz in Meppen/Ems wurde die Wasserdampffahne eines Naßkühlturms am Kraftwerk in drei Dimensionen vermessen. Die Ergebnisse sollten Grundlagen bilden für meteorologische Ausbreitungsrechnungen. Bei dieser Meßkampagne wurde das Gerät getestet auf seine Tauglichkeit für Feldmessungen. In einer zweiten Meßreihe wurde dann mit gesteigerter Empfindlichkeit gemessen, denn im Gegensatz zu Meppen, wo die Wasserdampfkonzentration ca. 10 Torr betrug, sollten in Ingolstadt über dem Gelände einer Raffinerie Äthylenkonzentrationen im ppb-Bereich erfaßt werden. Bei den Meßergebnissen von Ingolstadt war zweierlei von Interesse: Einmal sollte die Immissionssituation über der Raffinerie selbst bestimmt werden, zum anderen sollten auch Ausgangsdaten für die Berechnung der Emissionsrate der Raffinerie ermittelt und die konkreten Ausbreitungsparameter berechnet werden. Durch Aufnahme von vertikalen Konzentrationsprofilen konnten die Grunddaten erarbeitet werden, aus denen dann mit mathematischen Modellen die Ausbreitungsparameter ableitbar waren. So gelang es, die Ausbreitung der Äthylenwolke zu beschreiben durch Breite und Form des Konzentrationsprofils in horizontaler und vertikaler Richtung.

Neben diesen Ausbreitungsparametern wurde auch die Gesamtemissionsrate der Raffinerie bestimmt. Diese Messungen sind deshalb von großer praktischer Bedeutung, da gesetzliche Bestimmungen sich an Emissionsraten orientieren.

Die Leistungsfähigkeit des beschriebenen Lidargerätes ist durch die Messungen bewiesen worden, so daß in Zukunft ein Einsatz für Überwachungsaufgaben möglich ist.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	I
Inhaltsverzeichnis	IV
Einleitung	
1. Grundlagen und Aufbau einer Lidarapparatur	2
1.1. Grundlagen für Messungen in der Atmosphäre mit Lasern	2
1.2. Allgemeine Lidargleichung	5
1.3. Das Verfahren der differentiellen Absorption	8
1.4. Verbesserung der Ortsauflösung durch Pulsformung	
bzw. Korrektur bei der Auswertung	12
1.4.1. Pulsformung durch Plasmafunken	13
1.4.2. Pulsformung mit einem Kristall als Güte-Schalter (Q-Switch)	15
1.4.3. Pulsformkorrektur mit rekursivem Gleichungssystem	16
1.4.4. Entfaltung der Rückstreuleistung $P(\lambda, R)$ unter Benutzung der Fouriertransformation	19
1.5. Apparativer Aufbau des DIAL-Gerätes	21
2. Bestimmung der Absorptionsquerschnitte unter atmo- sphärischen Bedingungen für CO_2 -Laserlinien	28
2.1. Absorptionsquerschnitte von Wasser	28
2.2. Absorptionsquerschnitte von Äthylen	31
3. Durchführung der Konzentrationsmessungen und Ergebnisse	42
3.1. Wasserdampfmessungen in Meppen	42
3.2. Äthylenmessungen an einer Erdölraffinerie in Ingolstadt	55
3.3. Meßgenauigkeit	64

4.	Ausbreitung von gasförmigen Substanzen in der Atmosphäre	65
4.1.	Ableitung der Diffusionsgleichung	65
4.1.1.	Molekulare und konvektive Diffusion	66
4.1.2.	Turbulente Diffusion	67
4.2.	Lösung der Diffusionsgleichung	69
4.2.1.	Festlegung der Exponenten r und s	72
4.2.2.	Explizite Form der Ausbreitungsgleichung für $r=s=2$	74
4.3.	Einteilung der Wetterlagen in Ausbreitungsklassen	75
5.	Auswertung von Ausbreitungsprofilen	78
5.1.	Bestimmung der Emissionsrate Q einer Quelle	78
5.2.	Berechnung der Ausbreitungsparameter σ_y, σ_z, r und s aus Meßdaten	79
6.	Ergebnisse der Ausbreitungsmessungen in der Atmo- sphäre	81
7.	Ausblick	85
	Literaturverzeichnis	87

Einleitung

Es besteht ein Konsens der Wissenschaftler, die sich mit der Stellung des Menschen in der Welt befassen, darüber, daß der Mensch der Natur gegenüber ein doppeltes Verhältnis besitzt. Er wird zunächst von der Natur in seiner physischen Seinsweise konditioniert, ist aber dann auch aufgerufen, im Sinne echter Selbstverwirklichung die Natur zu verändern. Diese Dualität der Stellung des Menschen in der Natur basiert auf der Tatsache der immensen, materiellen Überlegenheit der Natur dem Individuum gegenüber, das seinen Einfluß auf die Natur nur lokal begrenzt ausüben kann.

Mit der modernen gesellschaftlichen Entwicklung haben sich nun die Menschen immer mehr zusammengeschlossen und ihren Einfluß auf die Natur potenziert und so das von der Natur vorgeschlagene Gleichgewicht modifiziert. Dadurch wurde der Mensch jedoch auch verantwortlich für die materiellen Vorfälle, in deren Rahmen er sich heute verwirklichen soll. Diese neue Verantwortung ist eine Herausforderung für die Naturwissenschaft, Wege zu suchen, wie das lebensbedeutende Gleichgewicht Mensch-Natur erhalten werden kann. In Gefahr gekommen ist dieses Gleichgewicht durch die ungeheure technische Entwicklung in unserem Jahrhundert, wodurch Produkte anfielen, deren Beseitigung allzu arglos außer acht gelassen wurde. So wurden u.a. Stoffe in die Atmosphäre abgegeben, die auf lange Sicht die Existenz des Menschen gefährden, mit Sicherheit aber heute schon die Lebensqualität verschlechtern.

Es war daher ein genuin "physikalisches" Interesse, als man im letzten Jahrzehnt begann, unter Einsatz moderner Lasertechniken die Umwelt zu analysieren.

Gerade die optischen Methoden in Verbindung mit Laser-Lichtquellen zeigten sich als erfolgreich, wegen der genauen Meßergebnisse und der Möglichkeit der großräumigen Erfassung von eventuellen Schadstoffen /1/. Da es bei solchen Messungen in der Atmosphäre eine Vielzahl verschiedener Problemstellungen gibt, muß man die dem Problem angepaßten Methoden bzw. physikalischen Effekte sorgfältig prüfen und die geeignete Auswahl treffen /2/. Als Beispiel solch gelungener Methodenwahl kann wohl die Messung der HF-Konzentration an einem Aluminium-Hüttenwerk gelten /3/, wo gerade auch die für den Menschen oft schädlichen zeitlichen Spitzenwerte erfaßt wurden.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollte ein Meßsystem für großräumige Konzentrationsmessungen entwickelt werden. Aus den Messungen sollte sowohl die Immissionssituation, wie auch die Emissionsrate an zwei Industrieanlagen ermittelt werden. Weiterhin sollte eine Methode gefunden werden, die atmosphärischen Ausbreitungsparameter aus Messungen zu bestimmen und deren modellhafte Annahmen zu überprüfen.

1. Grundlagen und Aufbau einer Lidarapparatur

1.1. Grundlagen für Messungen in der Atmosphäre mit Lasern

Die Vielzahl der Prozesse, die für eine Erforschung bzw. Überprüfung von Schadstoffen in der Atmosphäre in Betracht gezogen werden müssen, umschließt im besonderen Rayleigh- und Miestreuung (elastisch), Fluoreszenz, Resonanzfluoreszenz, Absorption und Ramanstreuung. Die Wirkungsquerschnitte sind schematisch in der Abbildung 1 dargestellt und geben einen ersten Hinweis auf die Verwendbarkeit der Prozesse für Messungen in der Atmosphäre.

Aus der Graphik ist zu entnehmen, daß der Wirkungsquerschnitt für die atomare bzw. molekulare Fluoreszenz um viele Größenordnungen höher ist, als für die Rayleigh- oder Ramanstreuung; allerdings können Quenchingeffekte in den angeregten Zuständen die Quantenausbeute senken und den effektiven Wirkungsquerschnitt verringern. Außerdem ist das Fluoreszenzlicht meist über einen größeren Frequenzbereich verteilt und ein zur Unterdrückung der Hintergrundstrahlung nötiger, schmalbandiger Nachweis senkt den effektiven Wirkungsquerschnitt erneut.

Die Verwendung der Ramanstreuung für Messungen in der Atmosphäre bietet zunächst den Vorteil, daß mit einer festen Laserfrequenz ein stoffspezifischer Nachweis erfolgen kann. Aber eine hierzu notwendige Breitbandanalyse läßt das Rückstreusignal schnell in die Rauschgrenze sinken. Damit ist

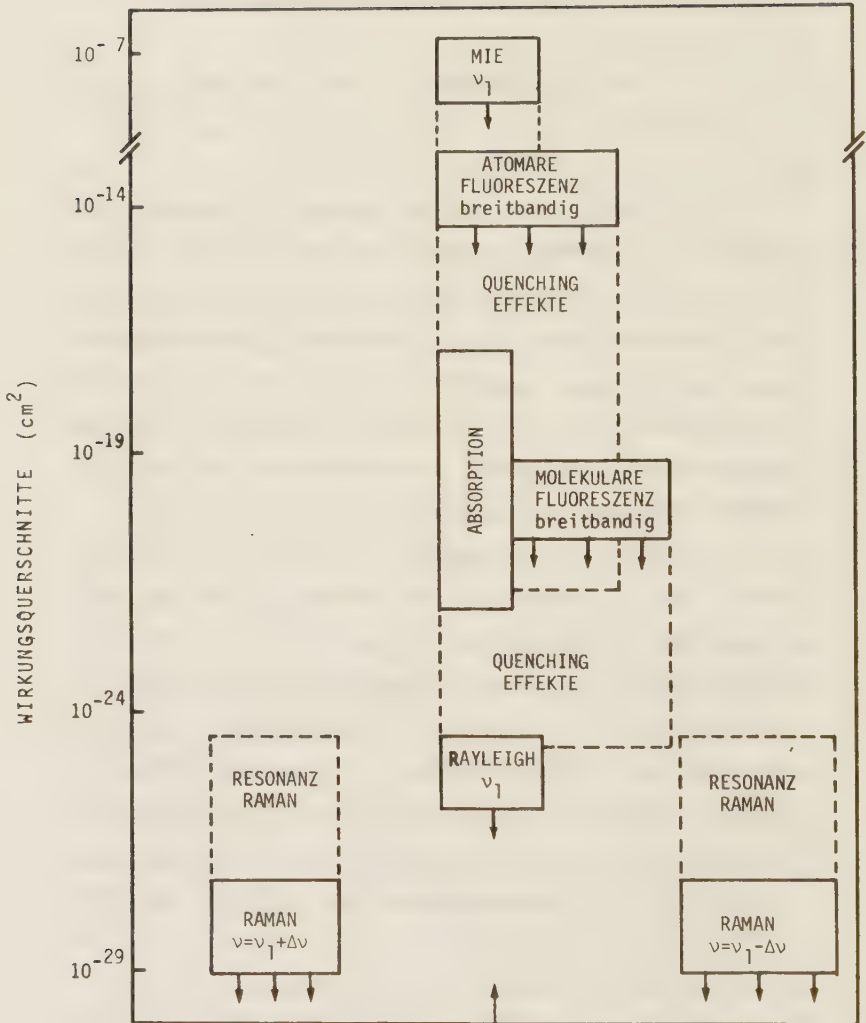


Abb. 1: Übersicht über die verschiedenen Streueffekte in der Atmosphäre und deren Wirkungsquerschnitte für einen Laser der Frequenz ν_1 nach /4/

die Einsetzbarkeit der Ramanstreuung auf kürzere Distanzen beschränkt.

Als empfindlichsten Prozeß für einen molekülspezifischen Nachweis über größere Entfernungen kann man wegen der großen Wirkungsquerschnitte die Absorption ansehen. Die meisten Luftverunreinigungen absorbieren im infraroten Spektralbereich (Vibrations-Rotations-Übergänge) und können, soweit Laser geeigneter Frequenz zur Verfügung stehen, in Absorption gemessen werden. Da kontinuierlich durchstimmbare Laser mit hoher Leistung noch nicht einsatzfähig sind, ist man auf zufällige Koinzidenzen der Emissionslinien von Festfrequenzlasern und Absorptionsfrequenzen bestimmter Luftverunreinigungen angewiesen.

Für diesen Fall sind kommerziell Lasergeräte erhältlich, die bei festen Frequenzen so leistungsstark sind, daß sie nach dem Radarprinzip in einem Lidar (Light Detection And Ranging) eingesetzt werden können. Bei diesen Lidarsystemen handelt es sich immer um Anordnungen, mit denen ein Laserpuls in die Atmosphäre ausgesandt, dort gestreut, und die zurückgestreute Strahlung nachgewiesen wird. Sind Sender und Empfänger am gleichen Ort, so spricht man von einem monostatischen System; sind darüberhinaus Aussende- und Empfangsoptik voneinander getrennt, so nennt man dies einen biaxialen Aufbau.

Ein solches monostatisches, biaxiales Lidarsystem mit einem Festfrequenz-IR-Laser zur Bestimmung von Luftverunreinigungen durch Absorptionsmessungen soll im folgenden behandelt werden.

1.2. Allgemeine Lidargleichung

Im Falle eines biaxialen Aufbaus eines monostatischen Lidar-systems kann man die Rückstreuleistung aus der Entfernung R unter Berücksichtigung der Pulsform j wie folgt angeben:

$$P(\lambda, R) = P_0 A_r \int_{-\infty}^{\infty} \xi(R') T(\lambda, R') N(R') \frac{d\sigma(\lambda)}{d\Omega} j(R-R') \frac{1}{R'^2} dR'$$

mit

$P(\lambda, R)$: Aus der Entfernung R zurückgestreute Leistung

P_0 : Normierungsfaktor für die Leistung des ausgesand-
ten Laserpulses

A_r : Fläche der Empfangsoptik

$\xi(R)$: Geometrischer Faktor für den Überlapp zwischen
Aussende- und Empfangsoptik

$T(\lambda, R)$: Transmission der Atmosphäre über die Entfernung R
bei der Wellenlänge λ

$N(R)$: Dichte des Rückstreumediums

$\frac{d\sigma(\lambda)}{d\Omega}$: Differentieller Streuquerschnitt der Rückstreuung

$j(R)$: Pulsformfunktion

Die im Detektionssystem nachgewiesene Energie ergibt sich unter der Annahme einer isotropen Rückstreuung und für einen rechteckigen Verlauf der Laseremission zu:

$$E(\lambda, R) = \eta E_1 T(\lambda, R) \frac{A_r}{R^2} N(R) \frac{\sigma(\lambda)}{4\pi} \frac{c(\tau_d + \tau_1)}{2} \xi(R)$$

wobei τ_d die Integrationszeit des Detektionssystems, τ_1 die Laserpulsdauer, E_1 die Energie des Laserpulses und η der Wirkungsgrad des Detektionssystems sind. Weiterhin wurde vorausgesetzt, daß $\tau_d, \tau_1 \ll \frac{2R}{c}$ sind.

Die effektive Ortsauflösung ist in diesem Falle gegeben durch die Laufzeit, die der Summe von Laserpulsdauer und Integrationszeit des Detektors entspricht:

$$\Delta R = \frac{c(\tau_1 + \tau_d)}{2}$$

Da im allgemeinen der Laserpuls weder Rechteckform hat, noch $\tau_d \ll \frac{2R}{c}$ bzw. $\tau_1 \ll \frac{2R}{c}$ gilt, müssen diese Sachverhalte explizit mit in die Behandlung einbezogen werden.

Der Einfluß der Zeit τ_d , der Integrationszeit des Detektionssystems, kann mathematisch mit Hilfe des Entfaltungstheorems der Fouriertransformationstheorie eliminiert werden (cf. Kap. 1.4.4), da sich das gemessene Signal aus Komponenten verschiedener Entfernungen zusammensetzt:

$$D(\lambda, R) = \int_{-\infty}^{\infty} D^+(\lambda, R-R') g(R') dR'$$

$D(\lambda, R)$: Gemessenes Signal aus der Entfernung R

$D^+(\lambda, R)$: Wirkliches Signal aus der Entfernung R

$g(R)$: Ansprechfunktion des Detektionssystems

Diese Ansprechfunktion $g(R)$ ist im Falle der Verwendung von Photomultipliern nahezu eine Deltafunktion, bei Detektordioden im infraroten Spektralbereich jedoch eine Exponentialfunktion mit bestimmter Zeitkonstante.

Durch Entfaltung obigen Integrals läßt sich bei Kenntnis von $g(R)$ und $D(\lambda, R)$ das Signal $D^+(\lambda, R)$ errechnen und somit der Einfluß der Zeitkonstanten des Detektionssystems korrigieren.

Wenn die Pulsform des Lasers eklatant von einem Rechteck abweicht, bzw. $\tau_1 \ll \frac{2R}{c}$ nicht zutrifft, was bei einem CO_2 -TEA-Laser der Fall sein kann, so muß dieser Tatsache mit dem Ansatz aus Kap. 1.2. Rechnung getragen werden.

Die Pulsformfunktion $j(R)$ ist einer experimentellen Messung zugänglich und es ist daher möglich, das Integral

$$\int_{-\infty}^{\infty} \xi(R') T(\lambda, R') N(R') \frac{d\sigma(\lambda)}{d\Omega} j(R-R') \frac{1}{R'^2} dR'$$

zu entfalten (cf. Kap. 1.4.4).

Die im Detektionssystem nachgewiesene Leistung ist dann

$$P(\lambda, R) = \eta E_1 A_r \frac{\sigma}{4\pi} \xi(R) T(\lambda, R) N(R) \frac{1}{R^2} \frac{c}{2}$$

Als Transmissionsfunktion $T(\lambda, R)$ für Hin- und Rückweg des Laserpulses nimmt man einen Ansatz nach dem Lambert-Beer'schen Gesetz:

$$T(\lambda, R) = \exp \left\{ -2 \int_0^R \varepsilon(\lambda, R') dR' \right\} \quad ,$$

wobei in $\varepsilon(\lambda, R)$ alle elastischen wie inelastischen Streuvorgänge, etwa Mie-, Rayleigh-, Raman- oder Fluoreszenzstreuung sowie die Absorption enthalten sein sollen (siehe Abb. 1).

1.3. Das Verfahren der differentiellen Absorption

Aus der Lidargleichung ist ersichtlich, daß lediglich die Transmission $T(\lambda, R)$ eine Wellenlängenabhängigkeit zeigt,

während die übrigen Faktoren Konstanten sind, bzw. nur von der Entfernung abhängen. Dies hat zur Folge, daß alle Verfahren einen Stoff zu identifizieren auf einer Änderung der Transmission bei fester Entfernung beruhen. Wegen der unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte der einzelnen Streuvorgänge brauchen nur die Miestreueung und die Absorption in Betracht gezogen werden, da die atomare und molekulare Fluoreszenz wegen Quenchingeffekten und wegen des breitbandigen Nachweises wesentlich geringere effektive Wirkungsquerschnitte besitzen.

Nimmt man demzufolge $\beta(R)$ als Koeffizienten der Rückstreuung, $n(R)$ als die Teilchendichte des Absorbers und $\sigma(\lambda)$ als Absorptionsquerschnitt, so erhält man:

$$T(\lambda, R) = \exp \left\{ -2 \int_0^R (\beta(R') + \sigma(\lambda) n(R')) dR' \right\}$$

Durch Division der Detektorsignale aus zwei verschiedenen Entfernungen R_1 und R_2 bei fester Wellenlänge λ bekommt man /5/:

$$Q(R_1, R_2, \lambda) = \frac{\xi(R_1) N(R_1) R_2^2 T(R_1, \lambda)}{\xi(R_2) N(R_2) R_1^2 T(R_2, \lambda)}$$

Eine nochmalige Quotientenbildung von $Q(R_1, R_2, \lambda_1)$ und

$Q(R_1, R_2, \lambda_2)$ bei zwei verschiedenen Wellenlängen liefert unter der Annahme, daß sich der Rückstreuoeffizient β bei geringer Variation der Wellenlänge nicht ändert, schließlich einen Ausdruck für die mittlere Teilchendichte des absorbierenden Mediums im Intervall $\Delta R = R_2 - R_1 \ll R_1, R_2$:

$$\bar{n} = \frac{\ln Q(R_1, R_2, \lambda_1) - \ln Q(R_1, R_2, \lambda_2)}{2 \{ \sigma(\lambda_2) - \sigma(\lambda_1) \} \Delta R}$$

Dieses Verfahren der doppelt differentiellen Absorption bietet den großen Vorteil, daß die Apparatekonstanten, wie spektrale Empfindlichkeit des Nachweissystems und Ausgangsenergie des Lasers, und auch die Streuquerschnitte der Miestreueung bzw. deren exakte Winkelverteilung nicht bekannt sein müssen, da sich jeder Laserpuls infolge der Quotientenbildung aus zwei Entfernungen selbst normiert, und durch Variation der Wellenlänge die entfernungsabhängigen Terme sich gegenseitig aufheben.

Ein besonderes Augenmerk ist bei der Methode der differentiellen Absorption zu legen auf die richtige Auswahl der verwendeten Wellenlängen. Diese sind so auszusuchen, daß ihre Differenz in den Absorptionskoeffizienten für eine bestimmte Substanz maximal wird, d.h. die zu bestimmende Substanz soll bei einer Wellenlänge möglichst stark, bei der anderen womöglich garnicht absorbieren. Zu erwähnen ist hier auch die Tatsache, daß für die Messung darüberhinaus keinerlei Eichung notwendig ist, man also absolute Angaben über die Teilchendichte in einem gewählten Entfernungsintervall be-

Substanz	Summen- formel	Laser- linie	Wellen- länge (μm)	Absorptions- koeffizient ($\text{atm}^{-1} \text{cm}^{-1}$)	Nachweis- grenze (ppm)	Literatur- hinweis
Ammoniak	NH_3	R(30)	9.220	120	0.003	/ 6/
Äthylazetat	$\text{C}_4\text{H}_8\text{O}_2$	P(20)	9.552	10	0.03	/ 7/
Äthylen	C_2H_4	P(14)	10.532	36	0.01	/ 8/
Benzol	C_6H_6	P(20)	9.552	0.7	0.4	/ 7/
tert-Butanol	$\text{C}_4\text{H}_{10}\text{O}$	R(18)	10.260	3	0.1	/ 7/
1-Buten	C_4H_8	P(38)	10.787	3.5	0.1	/ 9/
Freon 11	CCl_3F	R(30)	9.220	33.5	0.01	/10/
Freon 12	CCl_2F_2	P(26)	10.653	30	0.01	/ 7/
Freon 113	$\text{C}_2\text{Cl}_3\text{F}_3$	P(26)	9.604	20.8	0.02	/10/
Furan	$\text{C}_4\text{H}_4\text{O}$	R(20)	10.247	2	0.2	/ 7/
Isopropanol	$\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$	R(20)	9.271	3	0.1	/ 7/
Methanol	CH_3OH	P(34)	9.675	24.1	0.01	/10/
Methylchloroform	C_2HCl_3	R(20)	9.271	5	0.07	/ 7/
Ozon	O_3	P(14)	9.504	14	0.02	/11/
Trichloräthylen	C_2HCl_3	P(20)	10.591	15	0.02	/10/
Wasser	H_2O	R(20)	10.247	0.0008	417	/12/

Tabelle 1: Absorptionsquerschnitte und Nachweisgrenzen verschiedener Substanzen für einen CO_2 -Laser.

kommt.

Einen Überblick über gasförmige Substanzen in der Atmosphäre, die mit einem CO_2 -Lidarsystem erfaßt werden können, vermittelt Tabelle 1. Die in dieser Zusammenstellung aufgelisteten Nachweisgrenzen wurden ermittelt unter der Annahme einer 3%igen Absorption über eine Entfernung von 1 km.

1.4. Verbesserung der Ortsauflösung durch Pulsformung bzw. Korrektur bei der Auswertung

In Kap. 1.2. wurde eine erweiterte Lidargleichung abgeleitet, die berücksichtigt, daß die Laserpulsdauer im allgemeinen nicht als sehr kurz im Vergleich zur Laufzeit über die Entfernung R angenommen werden kann. Die allgemein verwendeten Lasersysteme haben Pulsdauern von 100 ns bis zu einigen μs , was von dem jeweiligen Aufbau abhängig ist. Bei einem realen Laserpuls, der stark von einer Deltafunktion abweicht, sind infolgedessen Korrekturmaßnahmen angezeigt, d.h. es muß entweder die Laseremission entsprechend angepaßt werden, oder aber der zeitliche Verlauf des emittierten Laserpulses bei der Auswertung des Rückstreusignals miteingerechnet werden. Dementsprechend kommen zwei verschiedene Verfahren zur Korrektur in Betracht: einmal die Formung des emittierten Laserpulses durch Plasmafunken oder mit einem Kristall als Güteschalter, zum anderen die Korrektur des Rückstreusignals durch Entfaltung mit Hilfe der vorgegebenen Pulsformfunktion $j(R)$.

1.4.1. Pulsformung durch Plasmafunken

Das zuerst genannte Verfahren zur Pulsformung basiert auf der Strahlunterbrechung mit Hilfe eines Plasmafunken. Dies wurde bereits 1970 vorgeschlagen /13,14/.

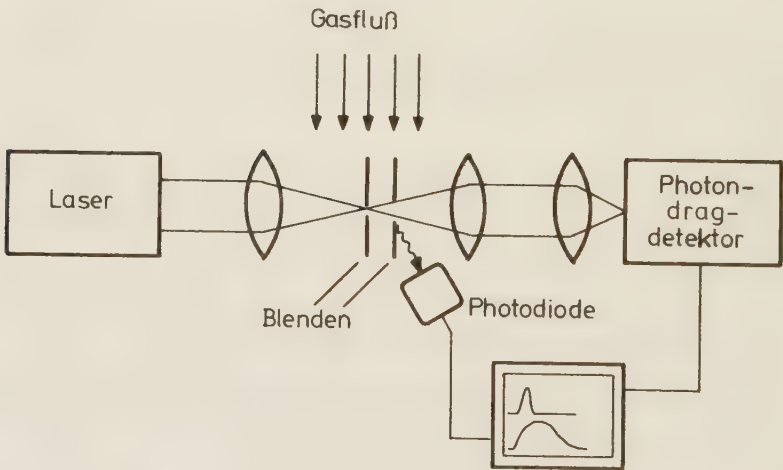


Abb. 2: Anordnung zur Pulskürzung durch Plasmafunken

Durch Fokussierung des Laserstrahles wird der Plasmafunken erzeugt. Dabei fällt der Brechungsindex von einem Wert von nahezu 1 im neutralen Gas auf 0 ab /15/, und die Elektronendichte übersteigt den kritischen Wert. Das Plasma reflektiert die einfallende Strahlung vollständig. Diese Reflexion nimmt in dem Maße zu, wie die Transmission abfällt. Um zu verhindern,

daß im Gebiet um den Fokussierungspunkt durch kleine Staubteilchen oder Makromoleküle ein Laserdurchbruch infolge Strahlungsabsorption vorkommt, muß man sauberes, reines Gas (Helium oder Stickstoff) in dieses Gebiet einführen.

Dann sind Leistungsdichten von 10^{12} Watt/cm² ohne Durchbruch erreichbar. Dies ist insofern wichtig, als der Laserpuls nicht zu früh und auch nicht unkontrolliert abgeschnitten werden soll. Dies wird insbesondere auch dadurch erreicht, daß in der Nähe des Fokus eine Metallirisblende aufgestellt wird, die unter Einwirkung der Laserstrahlung Ladungsträger erzeugt und so den Durchbruch begünstigt. Durch Bewegen der Blende entlang der Achse bzw. durch Variation der Blendenöffnung kann die Schwelle der Plasmabildung verschoben werden. Dies hat eine Verlagerung des Einsatzpunktes des Durchbruchs zur Folge und eröffnet die Möglichkeit, den Zeitpunkt des Abschneidens zu wählen und damit die Pulsdauer zu beschränken. Dieses Abschneiden geschieht im Zeitraum einiger Nanosekunden /16,17/.

Dieses Verfahren der Pulsformung ist in einem Lidarsystem zwar anwendbar, weist jedoch zwei Nachteile auf, die nicht unberücksichtigt bleiben dürfen. Einmal geht durch das Abschneiden ein erheblicher Teil der Pulsenergie verloren, zum anderen muß nach Yablonovitch /15/ bei hohen Intensitäten mit einer Frequenzverschiebung gerechnet werden, die die Messung der atmosphärischen Absorption beeinflussen kann.

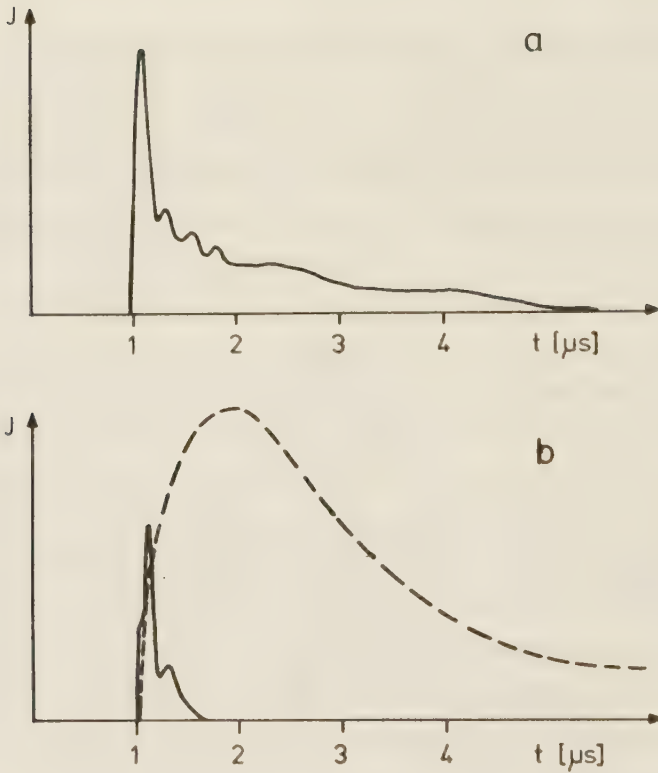


Abb. 3: a) Ursprünglicher CO_2 -Laserpuls
 b) Verkürzter CO_2 -Laserpuls mit Photodiodesignal
 infolge optischen Durchbruchs (gestrichelt)

1.4.2. Pulsformung mit einem Kristall als Güte-Schalter (Q-Switch)

Eine weitere Möglichkeit einen Laserpuls zu verkürzen, besteht in der Verwendung von Kristallen als elektrooptischen

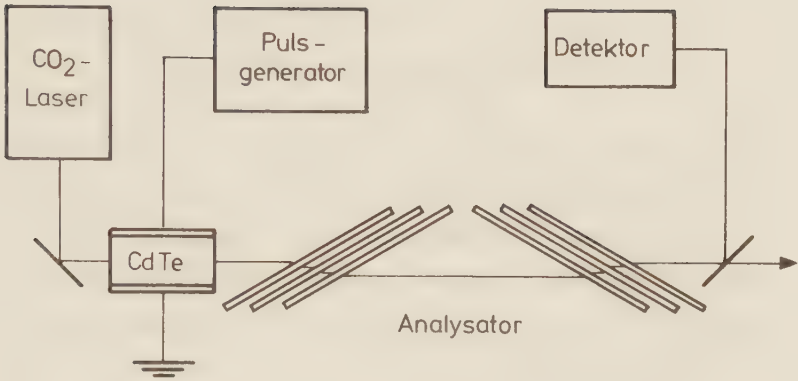


Abb. 4: Pulsschneidesystem mit einem CdTe-Kristall als Güteschalter

Schaltern. Die Polarisationsrichtung eines linear polarisierten Laserstrahls wird je nach Länge des Kristalls und der Stärke des elektrischen Feldes gedreht. So ist es möglich eine Änderung der Polarisationsrichtung um 90° zu erhalten /18/. Dieser Methode stellt sich die Schwierigkeit entgegen, daß für die Wellenlänge des CO₂-Lasers Kristalle (CdTe) von 60 mm Länge nötig wären; diese sind im Handel leider noch nicht erhältlich und konnten daher zur Pulsformung nicht eingesetzt werden.

1.4.3. Pulsformkorrektur mit rekursivem Gleichungssystem

Faßt man in der Lidargleichung aus Kap. 1.2. alle Terme der rechten Seite außer $j(R-R')$ zusammen zu $P^+(R')$, so erhält

man als Rückstreuleistung

$$P(\lambda, R) = \int_{-\infty}^{\infty} P^+(R') j(R-R') dR'$$

Die Entfaltung dieses Integrals kann dadurch geschehen, daß man den Ausdruck in eine Reihe von linearen, rekursiven Gleichungen zerlegt. Dieses Verfahren ist vor allem dadurch dem physikalischen Problem angepaßt, weil es Gebrauch macht von diskreten Zeit- bzw. Entfernungsintervallen /19/.



Abb. 5: Synthetische Pulsform und Rückstreuleistung als Funktion diskreter Zeitintervalle

Wird ein Laserpuls der Pulsform $j(t)$, wobei $t = N \cdot \Delta t$ mit der Kanalzeit Δt und der Kanalnummer N sei, zurückgestreut in der Atmosphäre, so empfängt man bei einem Aufnahmesystem

mit gleicher zeitlicher Rasterung in einem bestimmten Kanal N Signale aus verschiedenen Entfernungen, d.h. die echte Rückstreuleistung P^+ ist gefaltet mit der Laserpulsform j . Eine Berechnung der echten Rückstreuleistung P^+ aus der gemessenen Leistung P kann nach folgendem Algorithmus geschehen:

$$P(N) = \sum_{M=1}^N P^+(N-M+1) j(M)$$

Daraus ergibt sich

$$P^+(1) = P(1) / j(1)$$

$$P^+(2) = \{P(2) - P^+(1) j(2)\} / j(1)$$

$$\vdots$$

$$P^+(N) = \{P(N) - \sum_{M=2}^N P^+(N-M+1) j(M)\} / j(1)$$

Diese Rekursionsformel für $P^+(N)$ läßt sich sukzessiv lösen und ergibt das Rückstreusignal unter Berücksichtigung der Pulsform. Die Grenzen der Einsetzbarkeit dieser Entfaltungsmethode werden aufgewiesen durch die Werte $P(1)$ und $j(1)$, die aufgrund obiger Rekursionsformel mit erheblichem Gewicht in die Bestimmung von $P^+(N)$ eingehen, die aber wegen des Anstiegs von $P(N)$ und $j(N)$ mit größeren Unsicherheiten behaf-

tet sind, als z.B. deren Maximalwerte. Trotzdem kann mit dieser Methode eine Verbesserung der Auflösung um den Faktor 2 erzielt werden /20/.

1.4.4. Entfaltung der Rückstreuleistung $P(\lambda, R)$ unter Benutzung der Fouriertransformation

In dem Integral aus Kap. 1.4.3. können $P(R)$, die rückgestreute Leistung und $j(R, \lambda)$, die zeit- und frequenzabhängige Laseremission, durch Messung experimentell bestimmt werden. Daraus läßt sich die korrigierte Rückstreuleistung $P^+(\lambda, R)$ unter Anwendung der Fouriertransformation berechnen. Da R und t über die Lichtgeschwindigkeit verbunden sind, gehen wir über zu $P(t)$ bzw. $j(t)$. Sei $P_F(\omega)$ die Fouriertransformierte von $P(t)$, so gilt nach dem Entfaltungstheorem:

$$\begin{aligned} P_F(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} P^+(t-t') j(t') dt' \right\} dt \\ &= P_F^+(\omega) \cdot j_F(\omega) \quad \text{oder} \\ P_F^+(\omega) &= P_F(\omega) / j_F(\omega) \end{aligned}$$

Durch die inverse Fouriertransformation erhält man sodann $P^+(t)$, d.i. die durch die entsprechende Pulsform $j(t)$ korrigierte Rückstreuleistung.

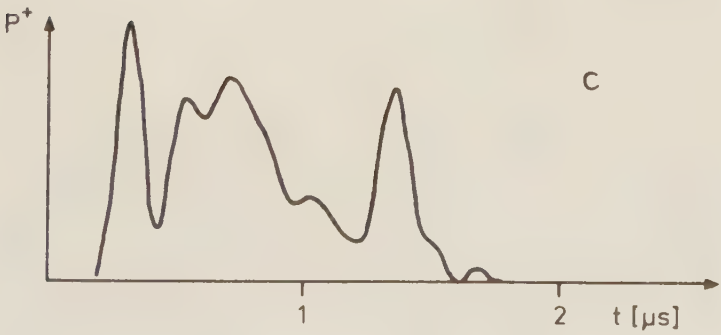
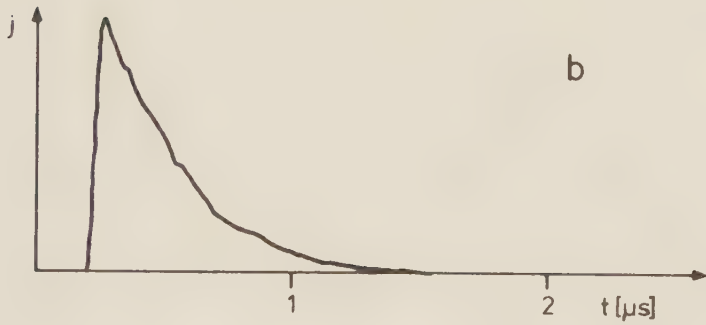
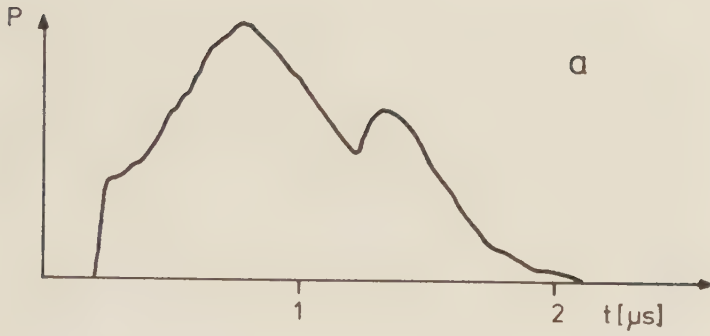


Abb. 6: a) Rückstreuleistung $P(t)$
 b) Pulsformfunktion $j(t)$
 c) Entfaltete Rückstreuleistung $P^+(t)$

Bei der experimentellen Bestimmung von $j(t)$ und $P(t)$ verwendet man Transientenrekorder, die eine zeitabhängige Messung erlauben. Die Zeitauflösung ist durch die Verweilzeit in den Kanälen vorgegeben. Praktisch ist diese jedoch nicht zu erreichen, da infolge beschränkter Laserpulszahl, atmosphärischer Turbulenz und sonstiger Schwankungserscheinungen jeweils über einige Kanäle (2-4) gemittelt werden muß. Dadurch verringert sich die zeitliche (örtliche) Auflösung entsprechend. In jedem Fall jedoch bringt die Entfaltung mit Hilfe der Laserpulsform eine Steigerung der Auflösung. Ein Beispiel dafür ist in Abbildung 6 dargestellt. Von den hier diskutierten Methoden zur Verbesserung der Ortsauflösung ist die Entfaltung durch Fouriertransformation mit Hilfe der gemessenen Pulsform die wirkungsvollste, und aus diesem Grunde wurde lediglich diese bei der Auswertung der Messungen benutzt.

1.5. Apparativer Aufbau des DIAL-Gerätes

Für zwei Feldmeßserien, die in Meppen und in Ingolstadt durchgeführt wurden, ist das entwickelte DIAL-Gerät (Differential Absorption Lidar) eingesetzt worden. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 7 wiedergegeben. Als IR-Lichtquelle fungiert ein CO_2 -TEA-Laser der Firma Lumonics vom Typ 801A. Dieser Laser erlaubt eine hohe Repetitionsrate von maximal 70 Hz bei einer Pulsenergie von 1.3 J und einer Pulsdauer von ca. 100 ns. Als Betriebsgase finden CO_2 , He und Formiergas 85/15 Verwendung. Die Wellenlängenabstimmung über

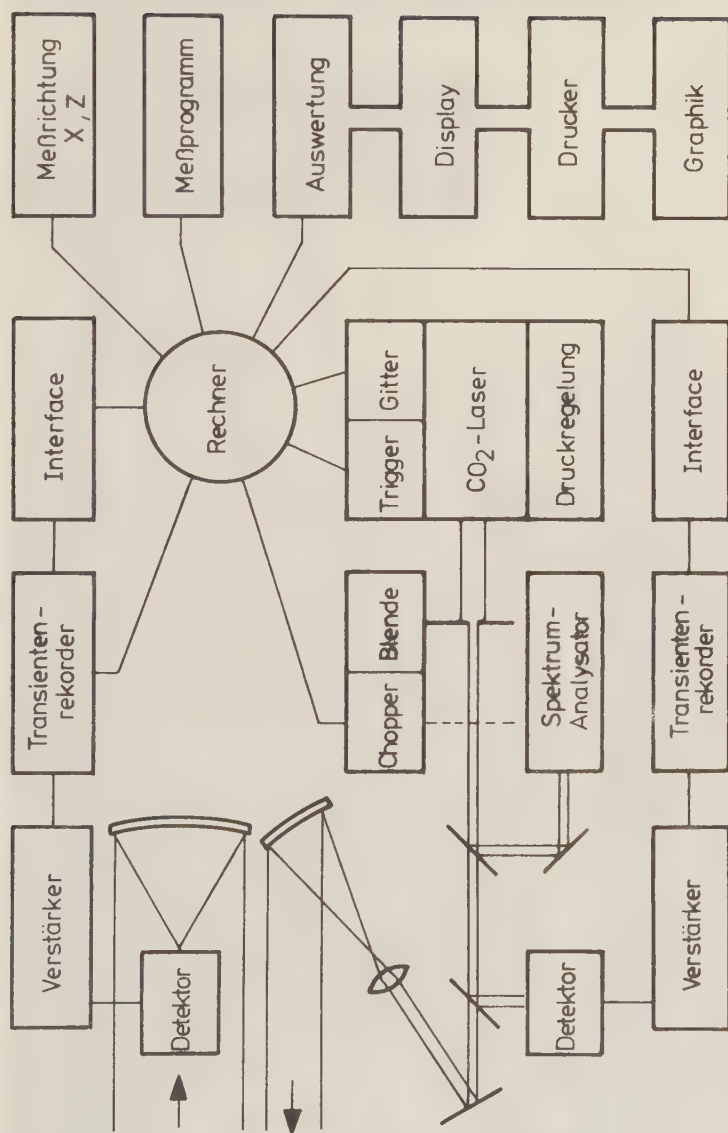


Abb. 7: Schematischer Aufbau des DIAL-Gerätes

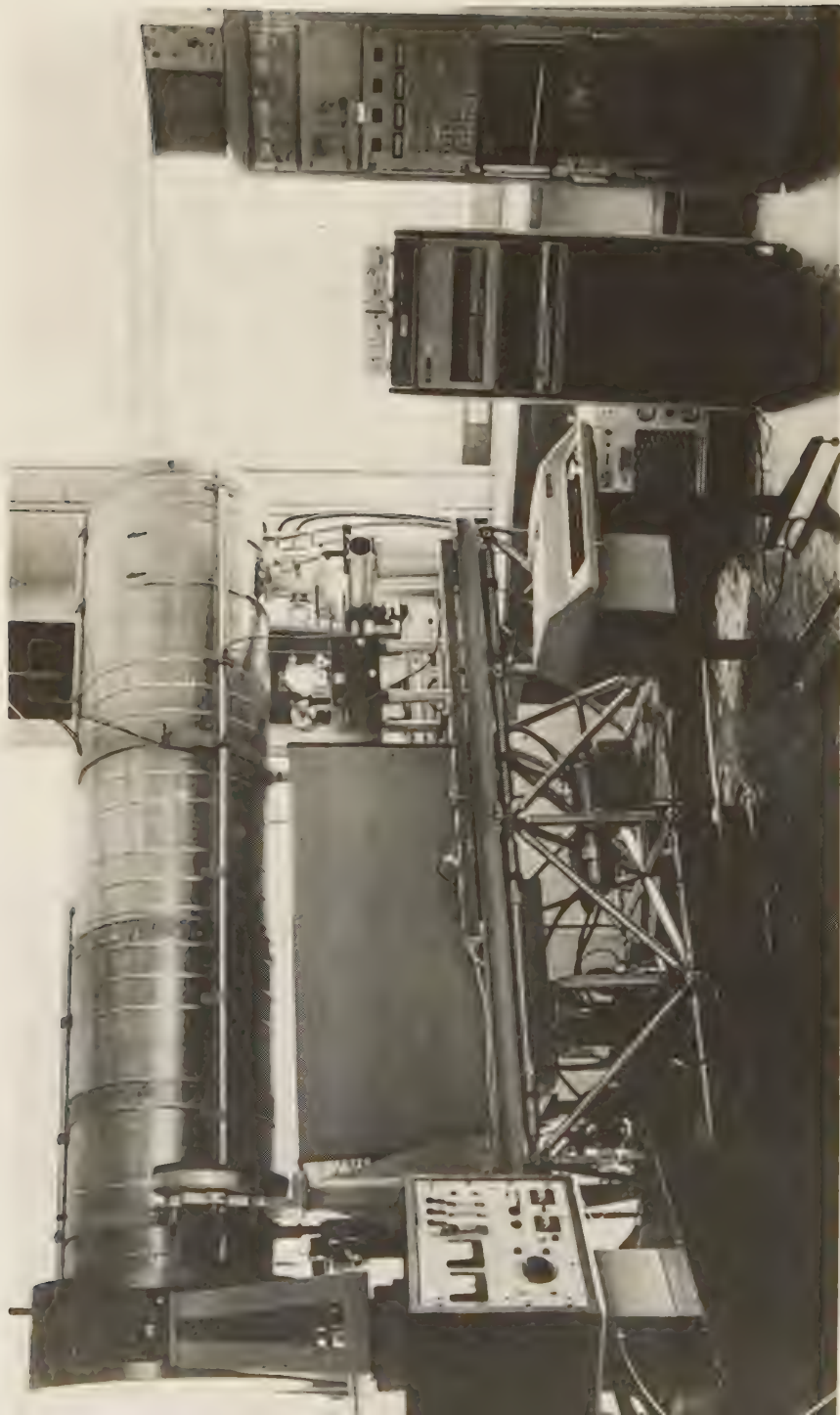


Abb. 8: Gesamtansicht der Apparatur im Labor

48 Linien der Übergänge $00^0_1 - 02^0_0$ und $00^0_1 - 10^0_0$ des CO_2 -Moleküls erfolgt über ein Reflexionsgitter (75 Striche pro mm, Blaze-Winkel für $10.6 \mu\text{m}$), das durch ein Brewsterfenster (NaCl) vom Entladungsrohr getrennt in einer speziellen Kammer angeordnet war. Es wurde entweder im Vakuum oder in Heliumatmosphäre gehalten und von einem Schrittmotor auf den gewünschten Übergang eingestellt. Für konstante Entladungsverhältnisse im Laser sorgt eine Druckregelung, die den optimalen Gasdruck (bei 20 Hz etwa 400-500 Torr) garantiert. Der Rechner (PDP 11/10) übernimmt schließlich die Triggerung der einzelnen Laserpulse, um sicherzugehen, daß durch die immensen Streufelder der Gasentladung (32 kV , 10^4 A) keine Störungen im Nachweissystem und in der Datenverarbeitung auftreten. Der emittierte Laserstrahl wird von einer Irisblende auf den erforderlichen Durchmesser begrenzt. Dadurch kann die Leistung des Lasers angepaßt werden, und zugleich verbessert sich die Divergenz des Strahles. Hinter der Blende ist ein Chopperrad angebracht, das den Laserstrahl blockieren kann. Dies ist notwendig zur Registrierung der sogenannten Nullmessung, d.i. das elektrische Störsignal, das durch die Entladung im Nachweissystem eingestreut wird, ohne daß ein echtes Rückstreusignal vorhanden ist. Diese Nullmessung wird nach jeder Einzelmessung durchgeführt (cf. Tab.8) und das Rückstreusignal entsprechend korrigiert.

Nach dem Chopper zweigt ein Strahlteiler einen Teil der Laserintensität ab zur Frequenzkontrolle in einem Spektrumanalysator. Ein weiterer Strahlteiler koppelt die für einen Detektor nötige Energie aus. Mit diesem Detektor und der nach-

folgenden Digitalisierung und Speicherung lassen sich der zeitliche Nullpunkt, Pulsform und Pulsenergie für etwaige Normierung registrieren. Der Laserstrahl wird schließlich in einem Linsen-Hohlspiegelsystem 10fach aufgeweitet und in die Atmosphäre emittiert.

Das rückgestreute Licht wird von einem Hohlspiegel aufgenommen und durch einen Detektor nachgewiesen. Der Hohlspiegel mißt 62 cm im Durchmesser, wurde auf der Oberfläche mit Aluminium bedampft und hat eine Brennweite von 240 cm. Der Detektor besteht aus einem mit Quecksilber dotierten Germaniumkristall von 1 mm Durchmesser. Der Kristall muß mit einer Kältemaschine in einem geschlossenen Kreislauf auf 10 K gekühlt werden, um die größte Empfindlichkeit und das geringste Eigenrauschen zu erreichen. Das Ausgangssignal des Detektors wird verstärkt und in einem Transientenrekorder vom Typ Biomation 610B als Funktion der Laufzeit gespeichert und über das Interface vom Rechner abgerufen. Die kürzeste Kanalzeit des Rekorders ist auf 100 ns (dies entspricht 15 m Ortsauflösung) beschränkt bei 256 Kanälen und 6 Bit Auflösung pro Kanal. Der Rechner PDP 11/10 summiert die Rückstreusignale der einzelnen Laserpulse auf und speichert sie als Funktion der Zeit ab, d. h. als Funktion der Entfernung R . Für die dreidimensionale Erfassung der Konzentration wurde das Koordinatensystem so gewählt, daß y in Meßrichtung liegt, und zusammen mit x und z ein kartesisches System bildet. Die Koordinaten x und z für diese dreidimensionale Erfassung entnimmt der Rechner zwei Weggebern, die am Drehfuß der Meßplattform angebracht sind. Die gesamte

CO ₂ -Lasersystem	
Pulsenergie	1.3 J
Pulsdauer	100 ns
Repetitionsrate	70 Hz
Entladungsdruck	400-500 Torr
Entladungsspannung	32 kV
Gase	CO ₂ , N ₂ /H ₂ , He
Verwendbare Linien	R(8)-R(30) bzw. P(8)-P(30) des 9.4 und 10.4 μ m Bandes
Aussendesystem	
Aufweitungslinse	BaF ₂ , f=27 cm
Aussendespiegel	goldbedampft, r=17 cm, f=260 cm
Strahldivergenz	0.2 mrad
Empfangssystem	
Empfangsspiegel	aluminiumbedampft, r=31 cm f=240 cm
Gesichtsfeld	1 mrad (mit ZnSe-Linse)
Detektor	Ge:Hg Kristall, r=0.5 mm, 10 K
Detektivität	$0.170 \cdot 10^{11}$ cm Hz ^{1/2} W ⁻¹
Nachweiselektronik	
Verstärker	Bandbreite 1 MHz, 0 bis 100 db
Transientenrekorder	256 Kanäle, 100 ns Kanalzeit, 6 Bit Auflösung
Rechner	PDP 11/10

Tabelle 2 : Technische Daten des DIAL-Gerätes



Abb. 9: Blick aus dem Möbelwagen in Meßrichtung für Standort Weppen B. Maximaler Schwenkbereich ca. 30°

Meßplattform ist auf einen hydraulisch gesteuerten Drehfuß montiert und ist in vertikaler und horizontaler Richtung beweglich. Im Meßprogramm ist schließlich die Steuerung einer Messung, d.h. die Anzahl der Laserpulse, der zeitliche Ablauf der einzelnen Vorgänge und die Positionierung der Meßplattform festgelegt. Nach Aufnahme der einzelnen Meßdaten kann die Auswertung nach dem in Kap. 1.3. beschriebenen Verfahren erfolgen. Es besteht weiterhin die Möglichkeit, die Konzentrationswerte auszudrucken oder die entsprechende graphische Gestaltung der Meßwerte vorzunehmen. Für die Feldmessungen wurde das DIAL-Gerät in einen Möbelwagenanhänger gebaut, was eine Begrenzung des Schwenkbereiches der Apparatur auf etwa 30° in beiden Richtungen nach sich zog. In der Tabelle 2 sind noch einmal die wichtigsten Daten des Meßsystems zusammengestellt.

2. Bestimmung der Absorptionsquerschnitte unter atmosphärischen Bedingungen für CO_2 -Laserlinien

2.1. Absorptionsquerschnitte von Wasser

Eine Schlüsselrolle bei den Vorgängen in der Atmosphäre spielt Wasser in den verschiedenen Aggregatzuständen. Für die Erforschung der chemischen Reaktionsmechanismen in der Atmosphäre ist daher die Kenntnis der Wasserdampfkonzentration bzw. des Wasseranteils allgemein ebenso unerlässlich wie bei meteorologischen Vorhersagen.

Um mit einem DIAL H_2O -Konzentrationen messen zu können, müssen nach Kap.1.3. die Absorptionsquerschnitte für die einzelnen CO_2 -Laserlinien bekannt sein.

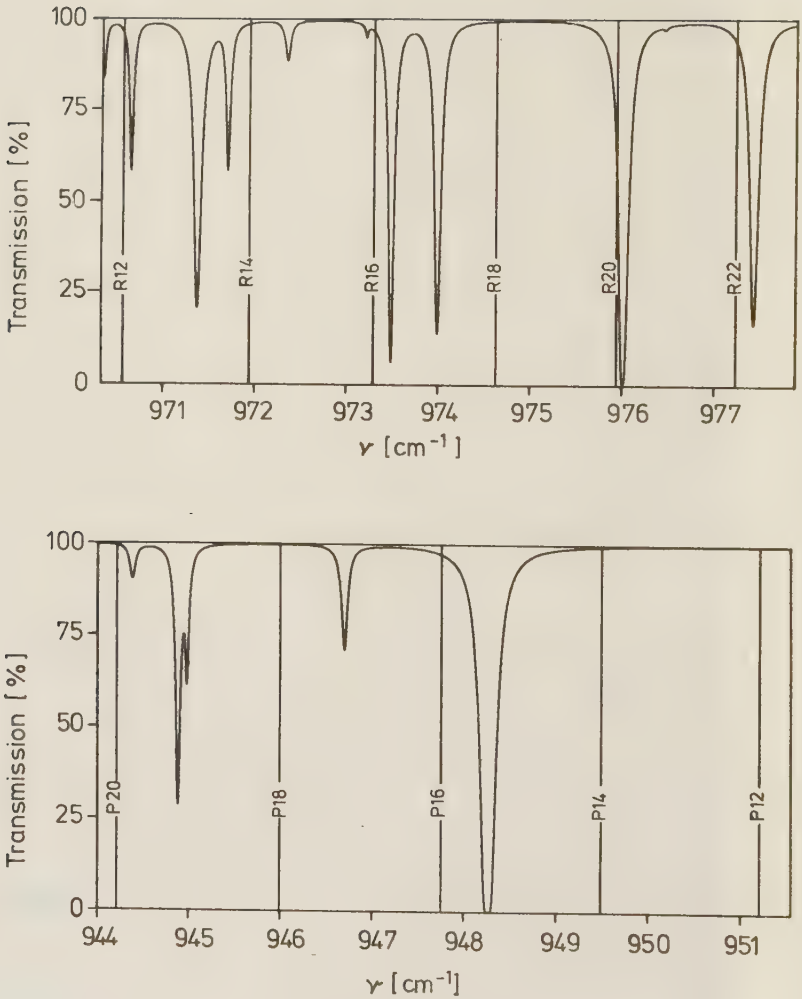


Abb. 10: Transmission der Atmosphäre im Bereich der Linien R(12) - R(22) und P(20) - P(12) des CO_2 -Lasers, errechnet nach /21/ für 1013 mbar Gesamtdruck, 10 °C Lufttemperatur, 20 mbar Wasserdampfdruck und 1.5 km Absorptionslänge

Linie	Wellen- länge (μm)	$\sigma \cdot 10^5$ ($\text{atm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$)	Linie	Wellen- länge (μm)	$\sigma \cdot 10^5$ ($\text{atm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$)
R(30)	9.220	9.78	R(30)	10.182	9.98
R(28)	9.230	6.99	R(28)	10.195	8.41
R(26)	9.240	6.84	R(26)	10.207	9.02
R(24)	9.250	7.45	R(24)	10.220	9.63
R(22)	9.261	6.99	R(22)	10.233	13.4
R(20)	9.271	7.14	R(20)	10.247	85.1
R(18)	9.282	7.35	R(18)	10.260	9.53
R(16)	9.294	10.6	R(16)	10.274	13.1
R(14)	9.305	26.5	R(14)	10.289	13.0
R(12)	9.317	9.53	R(12)	10.303	16.6
R(10)	9.329	6.33	R(10)	10.318	7.40
R(8)	9.342	---	R(8)	10.334	10.3
P(8)	9.458	---	P(8)	10.476	---
P(10)	9.473	19.6	P(10)	10.494	11.1
P(12)	9.488	7.09	P(12)	10.513	10.3
P(14)	9.504	7.85	P(14)	10.532	12.2
P(16)	9.520	7.90	P(16)	10.551	13.2
P(18)	9.536	7.09	P(18)	10.571	9.98
P(20)	9.552	7.30	P(20)	10.591	11.0
P(22)	9.569	8.01	P(22)	10.611	9.98
P(24)	9.586	7.70	P(24)	10.632	9.73
P(26)	9.604	6.94	P(26)	10.653	9.02
P(28)	9.621	22.6	P(28)	10.675	9.37
P(30)	9.639	7.04	P(30)	10.696	9.73

Tabelle 3 : Absorptionskoeffizienten für Wasser im 9.4 und

10.4 μm Band des CO_2 -Lasers nach /12/.

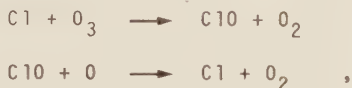
Dazu wurde ein Spektrum verwendet, das McClatchey et al. /21/ auf theoretischen Grundlagen unter Berücksichtigung atmosphärischer Bedingungen errechnet haben (cf. Abb. 10). In diesem Modell wurde eine Lorentzlinienform, verbreitert durch Fremddruck, angenommen. Bei hohen H_2O -Konzentrationen, wie sie in der Atmosphäre vorkommen (ca. 10^4 ppm), muß jedoch auch die Eigendruckverbreiterung berücksichtigt werden. Die von McClatchey et al. errechneten Absorptionskoeffizienten geben somit Hinweise auf eine mögliche Linienauswahl für das DIAL, können aber experimentelle Daten nicht ersetzen. So wurde von Shumate et al. /12/ das Absorptionsspektrum von Wasserdampf für die Linien des CO_2 -Lasers bei verschiedenen Partialdrücken unter atmosphärischen Bedingungen im Labor aufgenommen. Die Ergebnisse dieser Labormessungen sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Wasserdampfmessungen wurden diese Daten zugrunde gelegt. Als Absorptionslinien wurden ausgesucht die R(18) und R(20) des $10.4\text{ }\mu\text{m}$ Bandes, einmal wegen der großen Differenz ihrer Wirkungsquerschnitte, zum anderen, weil die Linien sehr gut anschwingen, und die Umschaltung von einer Linie auf die andere schnell erfolgen kann.

2.2. Absorptionsquerschnitte von Äthylen

Nach Untersuchungen von Leighton /22/, Demerjian, Kerr und Calvert /23/ sind Ozon-Olefin-Reaktionen wohl die wichtig-

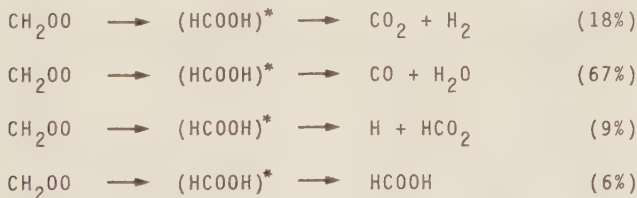
sten Vorgänge in der Atmosphärenchemie. Seit der Veröffentlichung von Rowland und Molina /24/ über den katalytischen Kreisprozeß



in dem Ozon in molekularen Sauerstoff umgewandelt wird, durch katalytische Wirkung von Chloratomen, die ihrerseits aus Freonen (CCl_3F , CCl_2F_2) unter Bestrahlung mit UV-Licht (180 - 230 nm) frei werden, wurde das Problem der Ozonolyse verstärkt beachtet. Einen wichtigen Anteil an dieser Ozonzersetzung stellt auch die Reaktionskette Äthylen-Ozon /25/ dar:



Das entstandene Methylenperoxid CH_2OO zersetzt sich zu:



Das Folgeprodukt HCO_2 zerfällt in:



Die Chemolumineszenz, die bei der Ozon-Äthylen-Reaktion

auftritt, rührt her vom Vorgang:



Die hierbei gebildeten Hydroxylradikale können reagieren mit Äthylen, Ozon oder Formaldehyd:



Das aus der Reaktion Ozon-Hydroxylradikal entstandene Hydroperoxylradikal reagiert weiter mit Ozon:



Die Kette der Umwandlung von O_3 nach O_2 beschließt endlich der Vorgang:



Den zeitlichen Verlauf der Ozon-Äthylen-Reaktion verdeutlichen nachfolgende Abbildungen 11a und 11b. Insgesamt hat die beschriebene Reaktion zwei verschiedene Konsequenzen: erstens wird Ozon umgewandelt zu molekularem Sauerstoff, was ähnliche Folgen hat wie der in der Literatur /26/ reich-

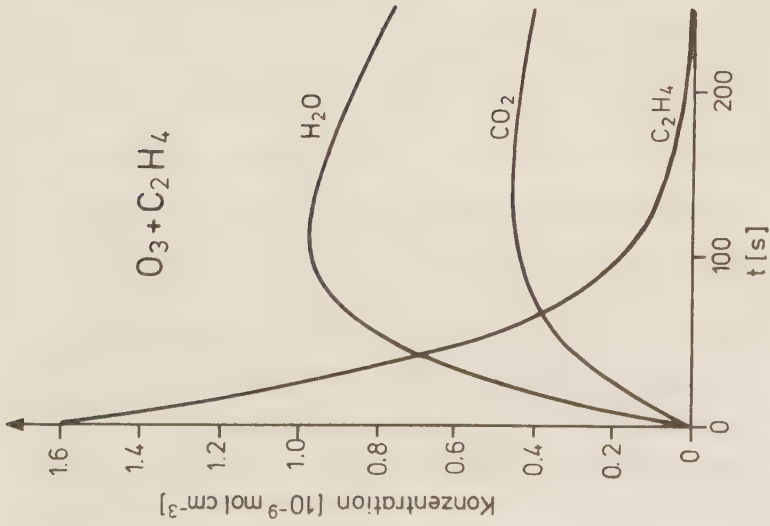
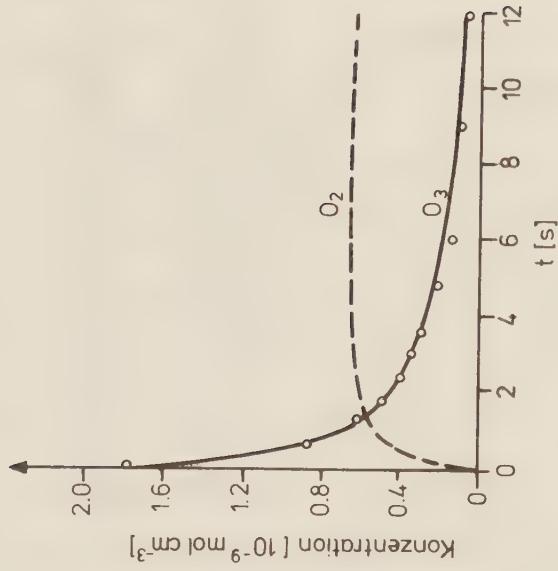


Abb. 11a: Ozon-Äthylen-Reaktion nach /25/

Abb. 11b: Ozon-Äthylen-Reaktion nach /25/
 O_2 -Kurve gerechnet

lich geschilderte Abbau von Ozon durch Freone; zweitens entsteht dabei Methylenperoxid, CH_2O_2 , das seinerseits zu etwa 90% in molekulare Bestandteile zerfällt, zu 10% aber freie Radikale für die Atmosphärenchemie bereitstellt /25/. Der für obengenannte Reaktionen notwendige C_2H_4 -Anteil stammt aus verschiedenen Quellen. In bodennahen Schichten tragen die Abgase aus Verbrennungsanlagen und Kraftfahrzeugen wesentlich bei. In höheren Lagen ist in den Abgasen von Flugzeugen Äthylen enthalten. Desweiteren stellen Äthylen-erzeugungsanlagen, undichte Äthylenfernleitungen und Destilliereinrichtungen von Erdölraffinerien wichtige Äthylenemittenten dar.

Für die Messung von C_2H_4 mit dem DIAL muß man, wie beim Wasser, die Absorptionskoeffizienten bei den einzelnen Emissionswellenlängen des CO_2 -Lasers kennen. Einen Überblick hierzu vermittelt das Äthylenabsorptionsspektrum nach Sadtler /27/ in Abbildung 12.

Die genauen Absorptionsquerschnitte werden in der Literatur angegeben /8,28,29/. Die Tabellen 4,5,6 und 7 stellen die Werte der verschiedenen Autoren zusammen, einschließlich eigener Meßwerte; diese erwiesen sich als notwendig, da die Absorptionsquerschnitte für die wichtigsten Kohlenwasserstoffe im Spektralbereich von 9 - 11 μm nicht bekannt waren. Gerade aber deren Kenntnis braucht man, um eine etwaige Querempfindlichkeit der einzelnen Kohlenwasserstoffe untereinander wie auch mit den wichtigsten Komponenten der Atmosphäre zu erkennen und dementsprechend die Auswahl der beiden Laserlinien für die differentielle Absorp-

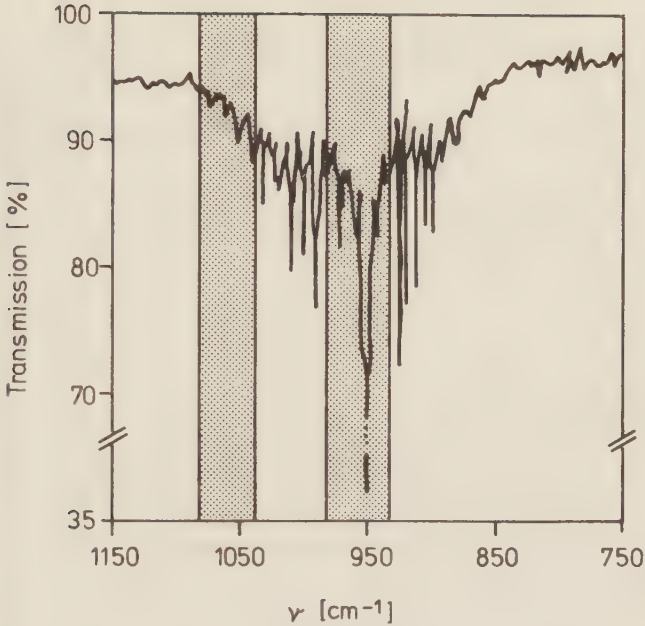


Abb. 12: Transmission einer 10 cm langen Küvette mit Äthylen bei 10 Torr Eigendruck. Die markierten Flächen sind die Frequenzgebiete des CO_2 -Lasers

tion treffen zu können.

Die Daten in den Tabellen 4 - 7 legen die Wahl der P(14) und der P(18) des $00^0_1 - 10^0_0$ Übergangs nahe. Diese beiden Linien werden vom CO_2 -Laser stark emittiert, liegen in ihrer Wellenlänge dicht zusammen und weisen eine große Differenz im Absorptionsquerschnitt auf. Die Wahl der Linie P(16) als Referenz empfiehlt sich nicht, da hier eine Querempfindlichkeit mit der Absorption durch Wasserdampf vorhanden ist [21,30].

Linie	Wellen- länge (μm)	Methan CH_4	Äthylen C_2H_4				Äthan C_2H_6	Propylen C_3H_6	Propan C_3H_8	Butan C_4H_{10}
		a	a	b	c	d	a	a	a	a
R(30)	9.220			0.18	0.22	---				
R(28)	9.230			0.05	0.05	---				
R(26)	9.240			0.08	0.11	0.11				
R(24)	9.250			0.16	0.18	0.16				
R(22)	9.261			0.09	0.10	0.14				
R(20)	9.271			0.17	0.17	0.26				
R(18)	9.282	<0.1	<0.1	0.59	0.61	0.58	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
R(16)	9.294			0.30	0.28	0.32				
R(14)	9.305			0.08	0.07	0.12				
R(12)	9.317			0.12	0.08	0.24				
R(10)	9.329			0.38	0.33	0.54				
R(8)	9.342			---	---	---				

Tabelle 4: Absorptionskoeffizienten σ ($\text{atm}^{-1}\text{cm}^{-1}$) für den R-Zweig des $00^0_1 - 02^0_0$ Übergangs des CO_2 -Lasers.

a = eigene Messungen, b nach /8/, c nach /28/, d nach /29/.

Linie	Wellen- länge (μm)	Methan CH_4	Äthylen C_2H_4				Äthan C_2H_6	Propylen C_3H_6	Propan C_3H_8	Butan C_4H_{10}
		a	a	b	c	d	a	a	a	a
P(8)	9.458			---	---	---				
P(10)	9.473			0.32	0.42	0.20				
P(12)	9.488			0.17	0.16	0.05				
P(14)	9.504			0.14	0.14	0.17				
P(16)	9.520			0.16	0.20	0.75				
P(18)	9.536	< 0.1	< 0.3	0.82	0.79	0.16	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3
P(20)	9.552			0.41	0.40	0.61				
P622)	9.569			0.83	0.82	0.12				
P(24)	9.586			0.37	0.42	0.22				
P(26)	9.604			0.22	0.23	0.04				
P(28)	9.621			0.15	0.24	1.24				
P(30)	9.639			1.28	1.27	0.66				

Tabelle 5: Absorptionskoeffizienten σ ($\text{atm}^{-1}\text{cm}^{-1}$) für den P-Zweig des $00^0_1 - 02^0_0$ Übergangs des CO_2 -Lasers.

a = eigene Messungen, b nach /g/, c nach /28/, d nach /29/.

Linie	Wellen- länge (μm)	Methan CH_4	Äthylen C_2H_4				Äthan C_2H_6	Propylen C_3H_6	Propan C_3H_8	Butan C_4H_{10}
		a	a	b	c	d	a	a	a	a
R(30)	10.182		0.51	0.63	0.56	0.81		0.94		
R(28)	10.195		1.86	2.44	2.35	2.92		0.83		
R(26)	10.207		1.98	2.15	2.16	2.35		0.94		
R(24)	10.220		4.16	5.03	5.04	5.08		0.83		
R(22)	10.233		2.61	2.94	2.64	3.37		0.94		
R(20)	10.247	<0.1	1.17	1.16	1.27	2.90	<0.1	0.73	<0.1	<0.1
R(18)	10.260		0.83	0.70	0.55	0.97		0.83		
R(16)	10.274		1.05	1.09	1.04	1.18		0.73		
R(14)	10.289		1.39	1.73	1.27	2.03		0.83		
R(12)	10.303		1.51	1.96	1.94	2.10		0.94		
R(10)	10.318		1.39	1.50	1.51	1.69		0.83		
R(8)	10.334		0.94	1.05	0.99	1.24		0.94		

Tabelle 6: Absorptionskoeffizienten σ ($\text{atm}^{-1}\text{cm}^{-1}$) für den R-Zweig des $00^0_1 - 10^0_0$ Übergangs des CO_2 -Lasers.

a = eigene Messungen, b nach / 8/, c nach /28/, d nach /29/.

Linie	Wellen- länge (μm)	Methan CH_4	Äthylen C_2H_4				Äthan C_2H_6	Propylen C_3H_6	Propan C_3H_8	Butan C_4H_{10}
		a	a	b	c	d	a	a	a	a
P(8)	10.476		1.3	1.79	---	3.05		1.7		
P(10)	10.494		1.7	3.47	3.10	3.09		1.7		
P(12)	10.513		2.9	4.92	4.35	4.33		1.9		
P(14)	10.532		19.7	36.1	29.1	32.1		2.1		
P(16)	10.551		3.4	5.63	4.55	5.45		2.1		
P(18)	10.571	< 0.1	2.4	3.68	3.28	3.36	< 0.1	1.9	< 0.1	< 0.3
P(20)	10.591		1.5	2.15	1.64	1.77		1.9		
P(22)	10.611		1.1	1.57	1.09	1.33		2.2		
P(24)	10.632		1.6	2.60	2.10	2.28		2.1		
P(26)	10.653		1.3	2.10	2.40	1.93		1.9		
P(28)	10.675		1.2	1.34	1.30	1.27		2.5		
P(30)	10.696		0.9	1.58	1.63	1.53		2.2		

Tabelle 7 : Absorptionskoeffizienten σ ($\text{atm}^{-1}\text{cm}^{-1}$) für den P-Zweig des $00^0_1 - 10^0_0$ Übergangs des CO_2 -Lasers.

a = eigene Messungen, b nach /8/, c nach /28/, d nach /29/.



Abb. 13: Lageplan des Kraftwerkes Meppen mit den Stand-
orten A und B der Lidarapparatur

3. Durchführung der Konzentrationsmessungen und Ergebnisse

3.1. Wasserdampfmessungen in Meppen

Diese Messungen wurden in Zusammenarbeit mit der *Eléctricité de France* im Rahmen einer großangelegten Meßkampagne zur Ermittlung aller Daten für eine synoptische Beschreibung der Verhältnisse am Naßkühlturm des Kraftwerkes in Meppen durchgeführt. Das Ziel war die Messung der dreidimensionalen H_2O -Dampfkonzentrationsverteilung in der Umgebung des Kühlturms, um dadurch Ausgangsdaten für eine modellhafte Ausbreitungsrechnung von H_2O -Dampffahnen zu erhalten. Um den verschiedenen Windrichtungen Rechnung zu tragen, wurden zwei Meßstandorte in 1.28 bzw. 1.5 km Entfernung vom Kühl-

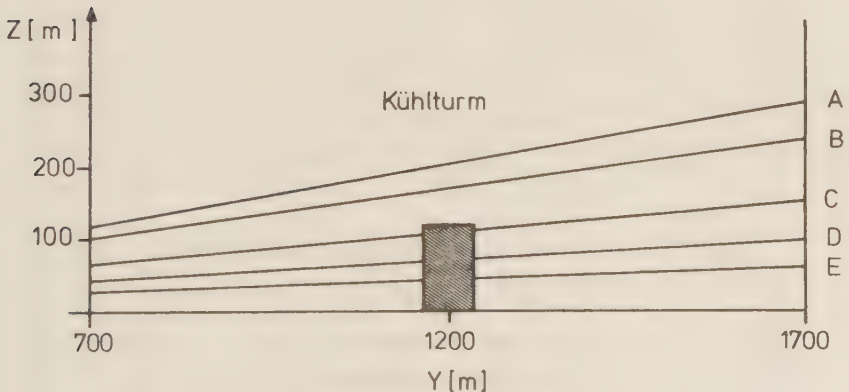


Abb. 14: Lage der Horizontalschnitte am Kraftwerk in Meppen

turm gewählt, deren Verbindungslinien zum Kühlturm annähernd senkrecht zueinander waren (cf. Abb. 13). Von diesen Standorten aus wurden horizontale Schnitte durch die Atmosphäre in verschiedenen Höhen gelegt (cf. Abb. 14). Da in der Umgebung der Kühlturmöffnung erhebliche Turbulenzen infolge thermischer Inhomogenitäten auftreten, können die gemachten Messungen nur als Mittelwert über die entsprechend benötigte Zeit angesehen werden. Diese Meßzeit ist bestimmt durch das Meßprogramm als solches (cf. Tab. 8), wie auch durch die Anzahl der jeweiligen Meßrichtungen.

Vorgang	Zeit (s)
Apparatur neu positionieren und auf Frequenz f_1 einstellen	10
1 Zyklus von 58 s	200 Einzelmessungen auf f_1
	20
	Laser abdecken
	1
	50 Nullmessungen
	5
	Abdeckung entfernen und Laser auf Frequenz f_2 einstellen
	3
	200 Einzelmessungen auf f_2
	20
	Laser abdecken
	1
	50 Nullmessungen
	5
	Abdeckung entfernen und Laser zurück auf Frequenz f_1 stellen
	3

Tabelle 8 : Zeitlicher Ablauf des Meßprogramms

In den Abb. 15 - 24 sind einige Meßergebnisse (vom 30.3.77) der Feldmeßkampagne ausgewählt und in Form von Isokonzentrationenlinien und deren dreidimensionaler Verdeutlichung für die H_2O -Dampfverteilung über dem Gelände des Kraftwerkes dargestellt. Hierbei wurde zwischen den einzelnen Meßrichtungen interpoliert mit einem mathematischen Verfahren, das sich kubischer Splinefunktionen in zwei Dimensionen bedient und ein beliebig dichtes Netz von Interpolationspunkten zur Verfügung stellt. Aus diesen erweiterten Daten werden die Isolinien entnommen und die 3D-Darstellung gezeichnet.

Die punktierten Linien sind die Umrisse des Kühlturmes oder die Grenzen der sichtbaren Kühlturmfahne, d.h. des kondensierten Wasserdampfes. In diese Fahne hinein oder durch sie hindurch konnte nicht gemessen werden, wegen des starken Anstiegs des Rückstreusignals in dieser Gegend, was zur Registrierung einen bedeutend größeren dynamischen Bereich der Nachweiselektronik erfordern würde. Die freigelassenen Flächen auf den graphischen Darstellungen resultieren aus der Abschattung durch den Kühlturm (D) oder durch die sichtbare Wasserwolke (A,B).

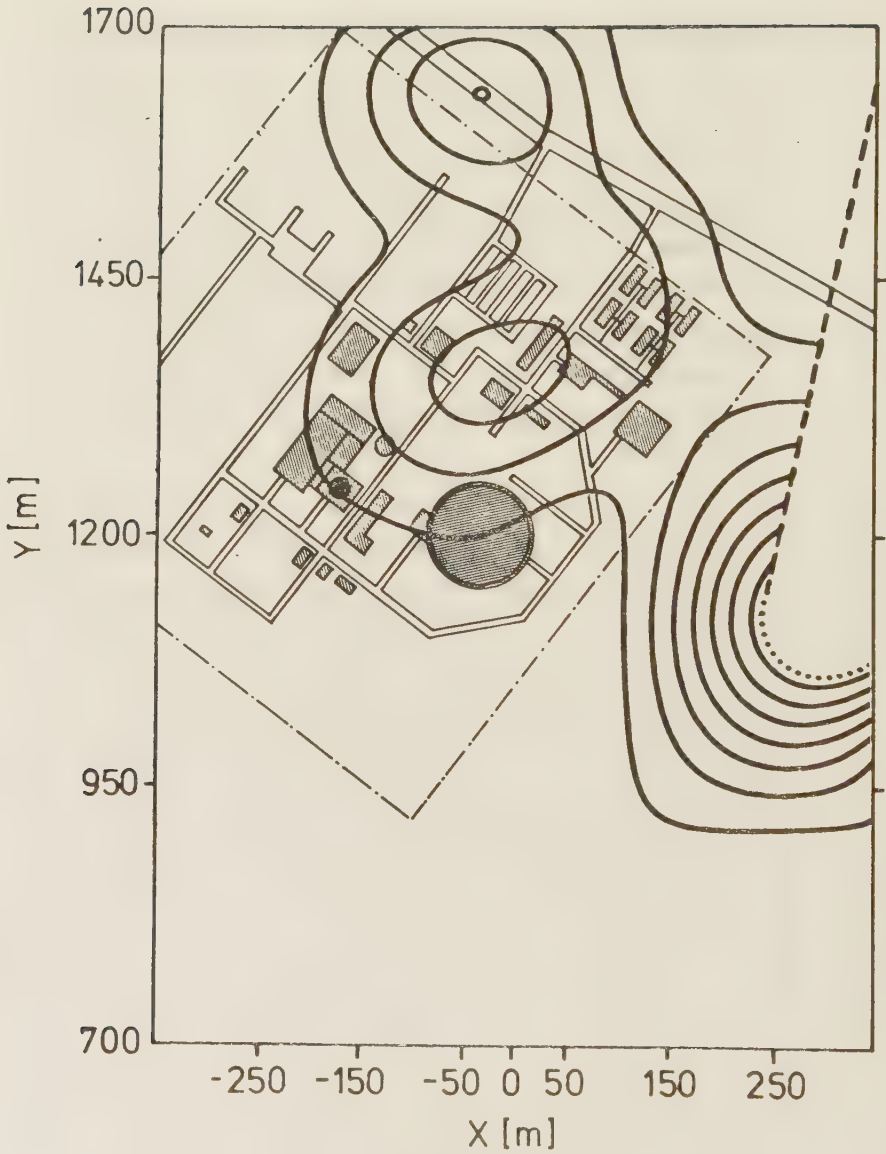


Abb. 15: Lageplan des Kraftwerkes Meppen und Isokonzentrationslinien für Wasserdampf. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 2 Torr.
Schnitt A (cf. Abb. 14)

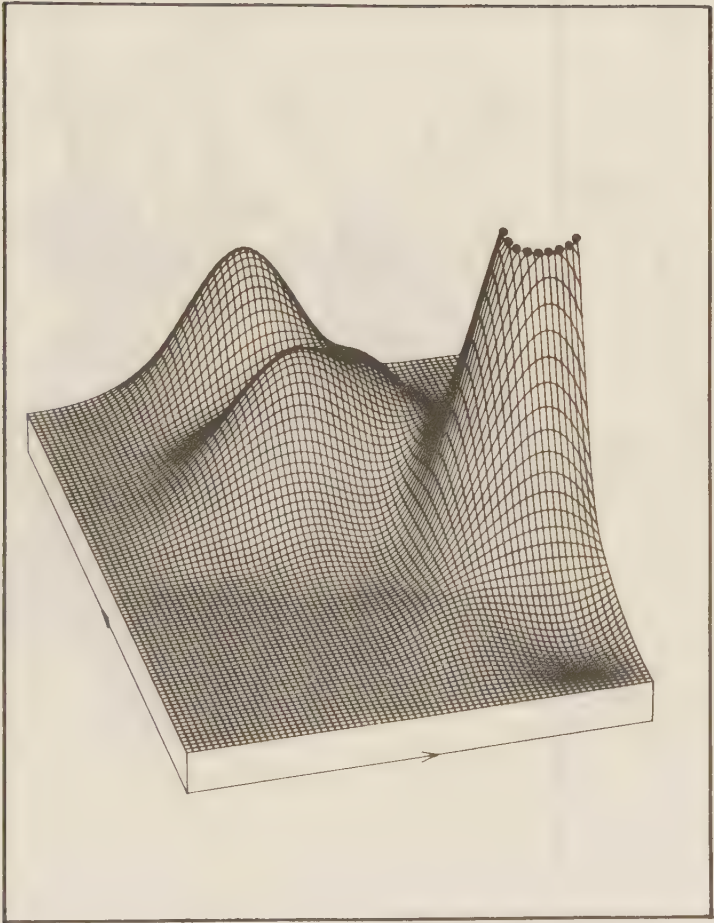


Abb. 16: Wasserdampfkonzentration über dem Kraftwerk in Meppen für Schnitt A (cf. Abb. 14). Auf der vertikalen Achse ist die Wasserdampfkonzentration dargestellt

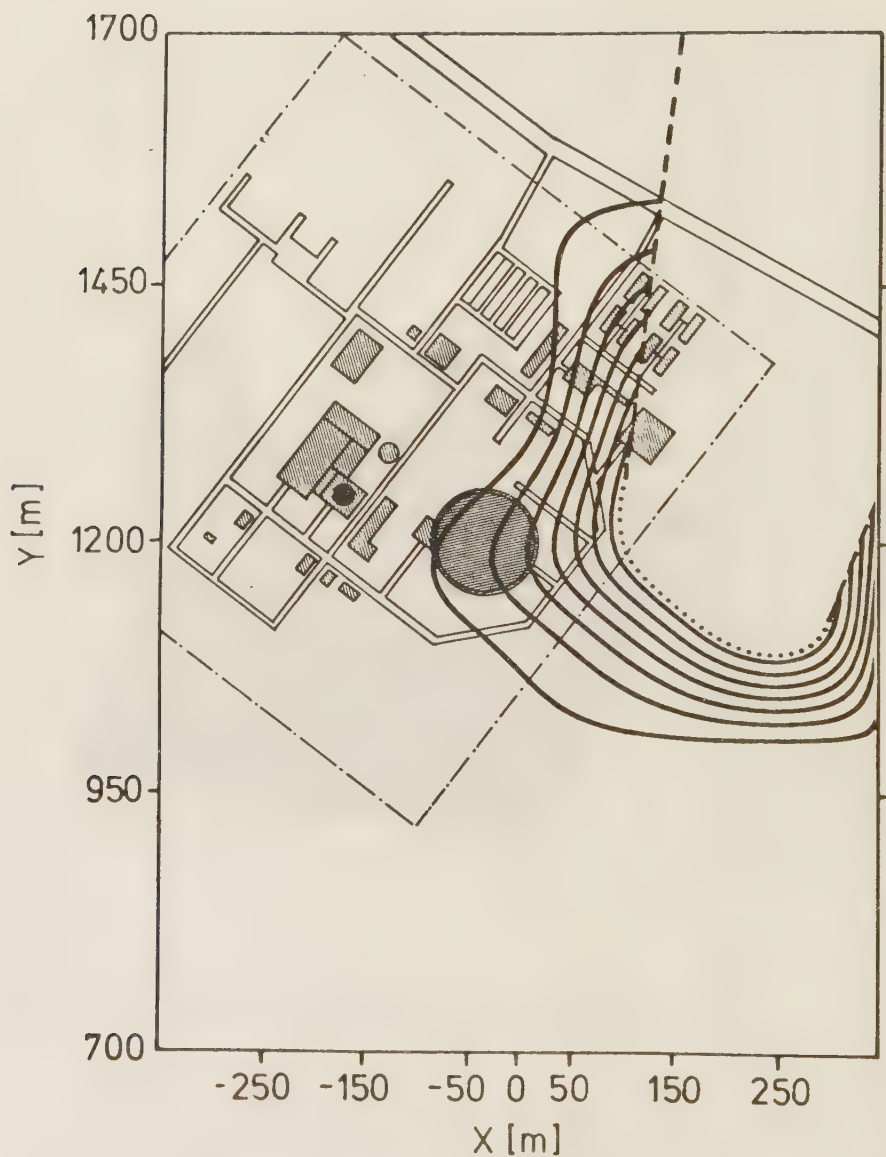


Abb. 17: Lageplan des Kraftwerkes Meppen und Isokonzentrationslinien für Wasserdampf. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 2 Torr.
Schnitt B (cf. Abb. 14)

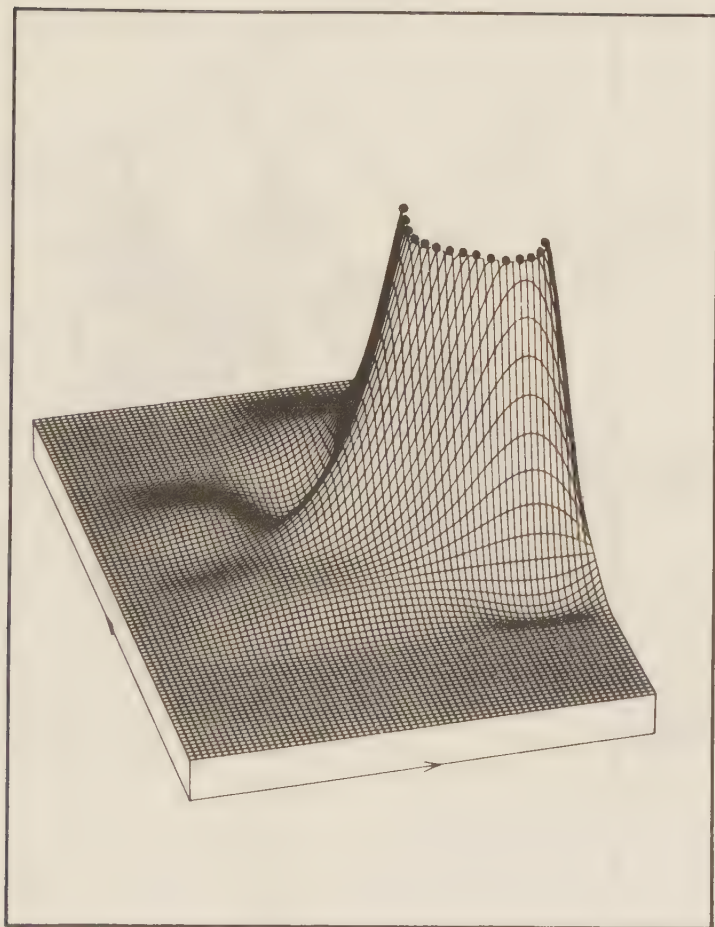


Abb. 18: Wasserdampfkonzentration über dem Kraftwerk in Meppen für Schnitt B (cf. Abb. 14). Auf der vertikalen Achse ist die Wasserdampfkonzentration dargestellt

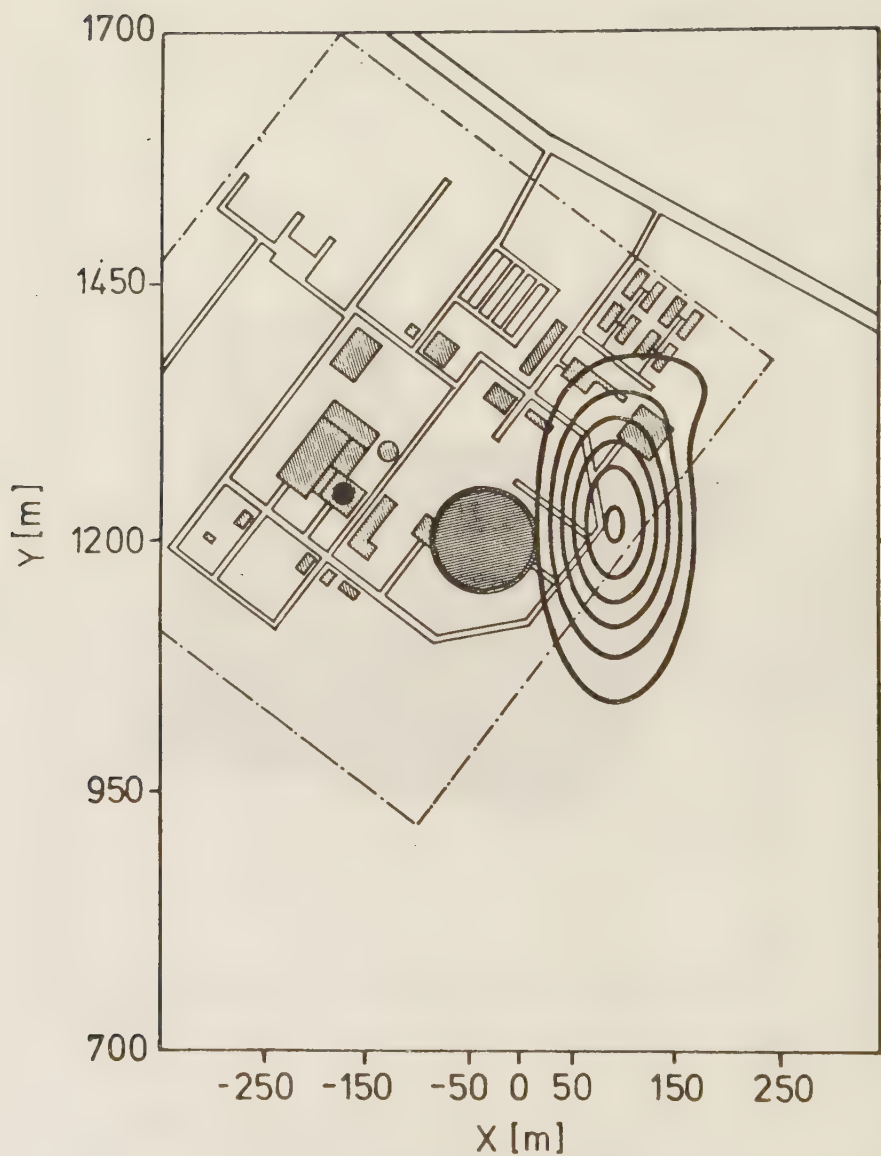


Abb. 19: Lageplan des Kraftwerkes Meppen und Isokonzentrationslinien für Wasserdampf. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 2 Torr. Schnitt C (cf. Abb. 14)

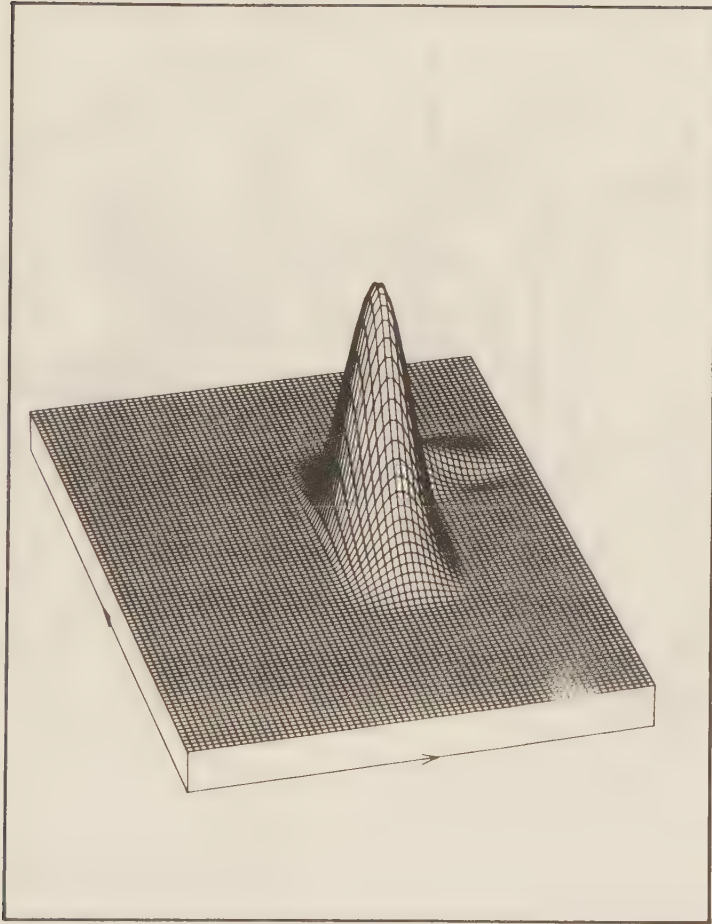


Abb. 20: Wasserdampfkonzentration über dem Kraftwerk in Meppen für Schnitt C (cf. Abb. 14). Auf der vertikalen Achse ist die Wasserdampfkonzentration dargestellt

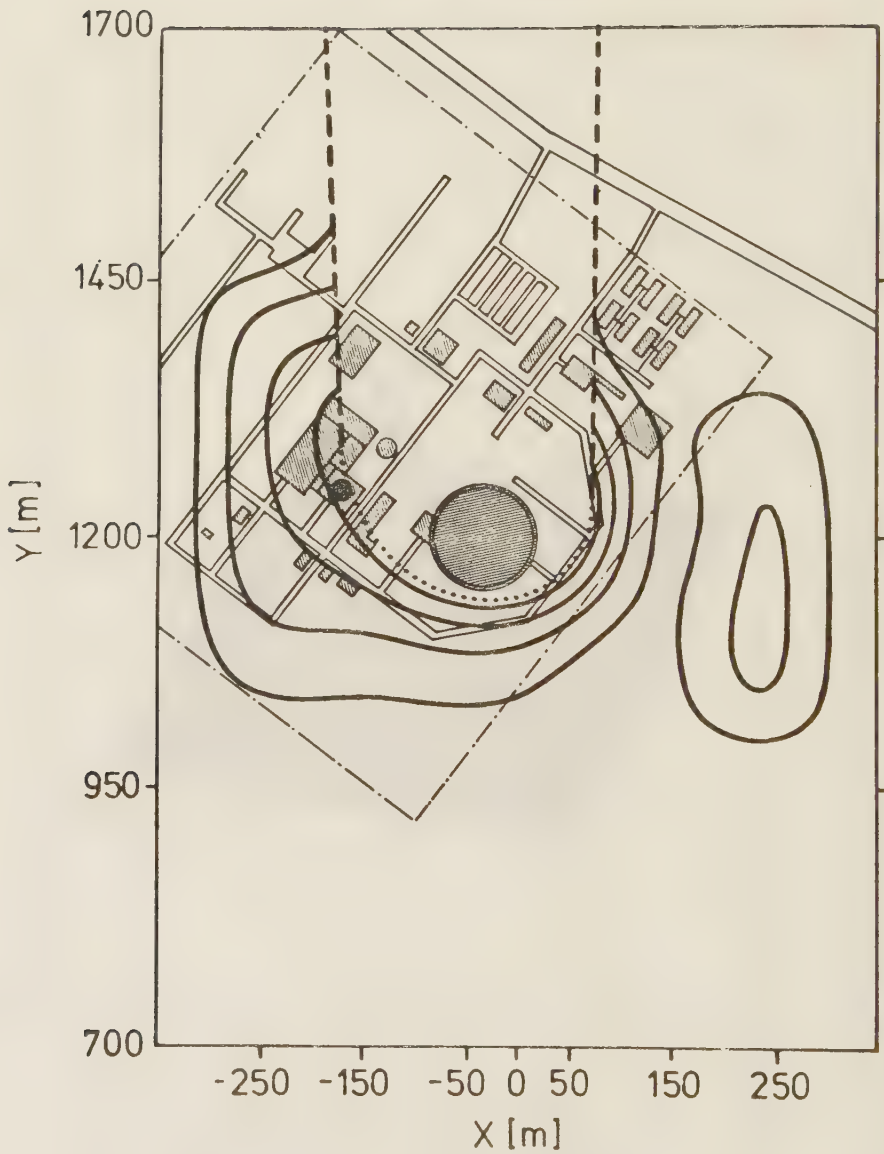


Abb. 21: Lageplan des Kraftwerkes Meppen und Isokonzentrationslinien für Wasserdampf. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 2 Torr. Schnitt D (cf. Abb. 14)

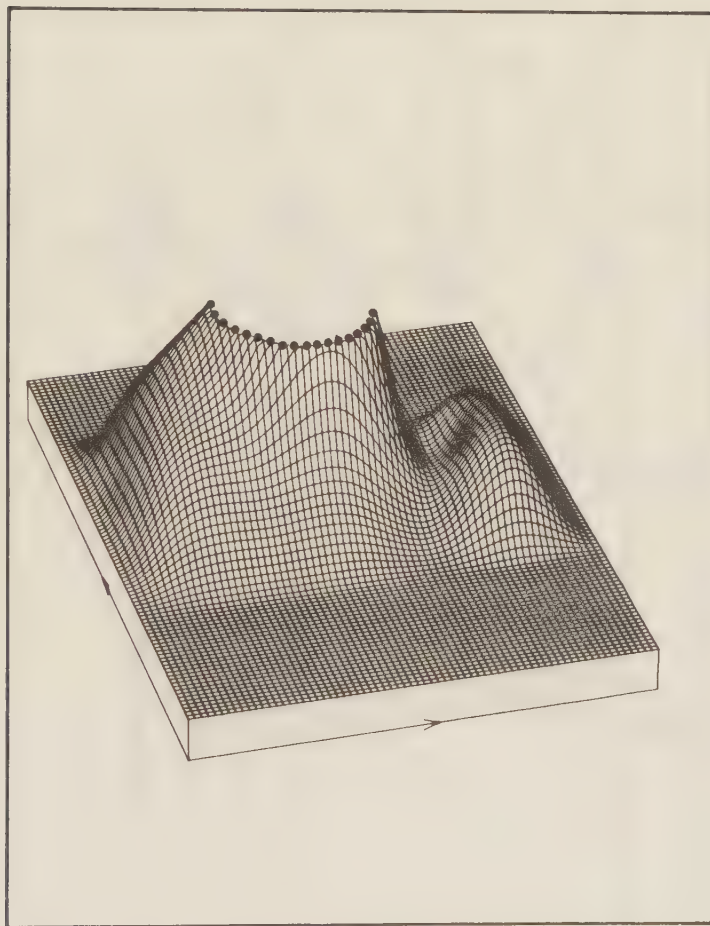
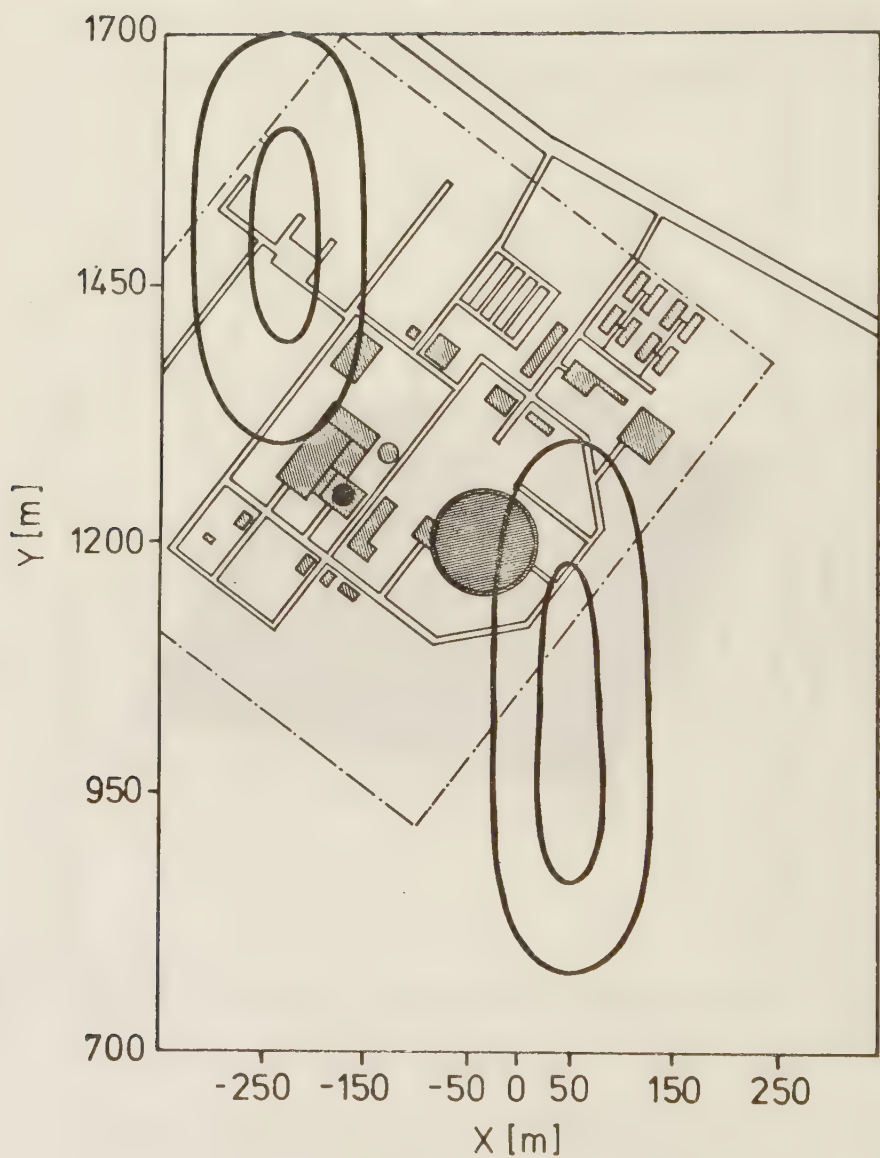


Abb. 22: Wasserdampfkonzentration über dem Kraftwerk in Meppen für Schnitt D (cf. Abb. 14). Auf der vertikalen Achse ist die Wasserdampfkonzentration dargestellt



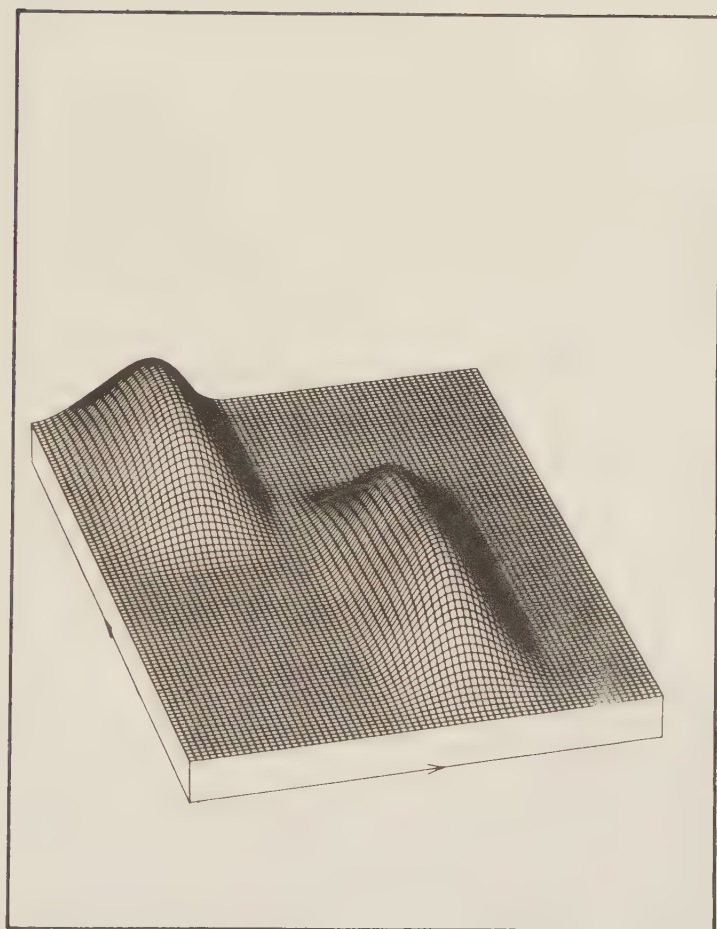


Abb. 24: Wasserdampfkonzentration über dem Kraftwerk in Meppen für Schnitt E (cf. Abb. 14). Auf der vertikalen Achse ist die Wasserdampfkonzentration dargestellt

3.2. Äthylenmessungen an einer Erdölraffinerie in Ingolstadt

Eine zweite Feldmeßkampagne wurde an einer Erdölraffinerie im Raume Ingolstadt angesetzt. Bei diesen in situ-Messungen sollten einmal die Ausweitung der Nachweisempfindlichkeit in den ppb-Bereich hinein erprobt und zum anderen Daten für Ausbreitungsrechnungen erarbeitet werden. Von Interesse waren daher sowohl die Immissionssituation über der Raffinerie wie auch die Emission von Äthylen bei der Aufbereitung des Erdöls in den technischen Anlagen.

Als Meßstandort wurde ein Bauernhof außerhalb des Geländes der Raffinerie in einer Entfernung von ca. 700 m gewählt (cf. Abb. 26). Wie schon bei den Messungen in Meppen wurden



Abb. 25: Lage der Horizontalschnitte an der Raffinerie in Ingolstadt

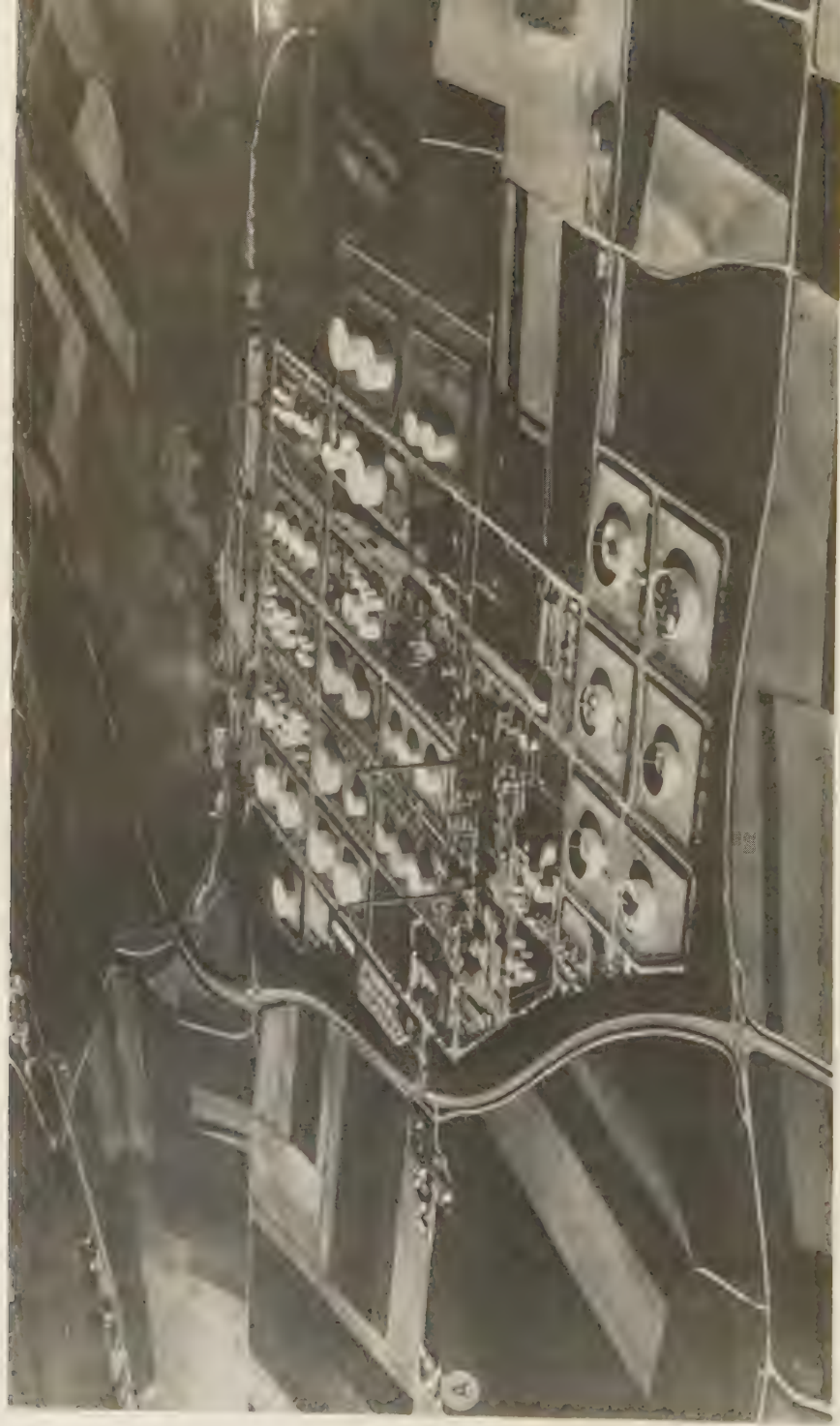


Abb. 26: Luftbild der Raffinerie in Ingolstadt mit Standort A der Lidarapparatur

wiederum Messungen entlang horizontaler Schnitte vorgenommen (cf. Abb. 25).

Zusätzlich waren jedoch noch Vertikalprofile notwendig, um aus den Konzentrationsdaten $c(x,y,z)$ die Emissionsrate bestimmen zu können (cf. Kap. 5.1.). Die Auswertung der Messungen bzw. deren graphische Gestaltung umfaßte die gleichen mathematischen Prozeduren wie bei der Bestimmung des Wasserdampfes in Meppen.

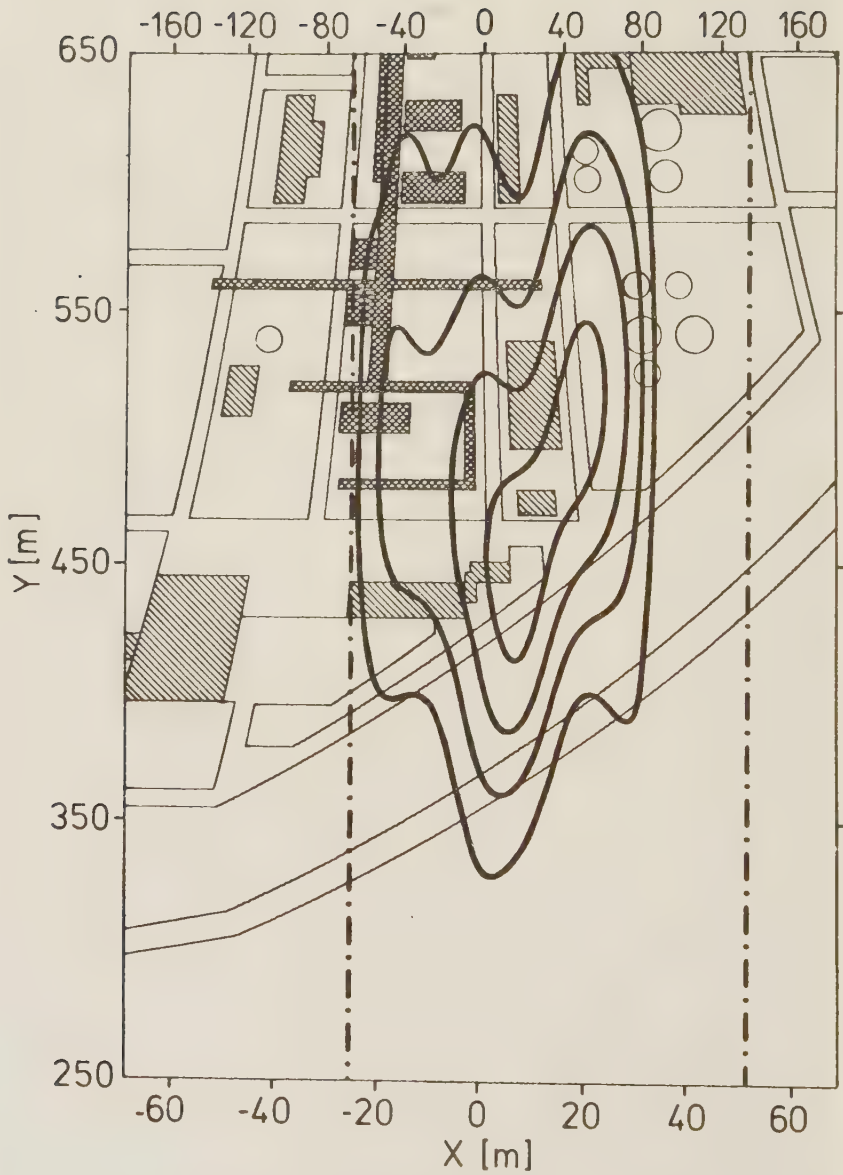


Abb. 27: Lageplan der Raffinerie in Ingolstadt und Isokonzentrationslinien für Äthylen. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 20 ppb. Schnitt A (cf. Abb.25)

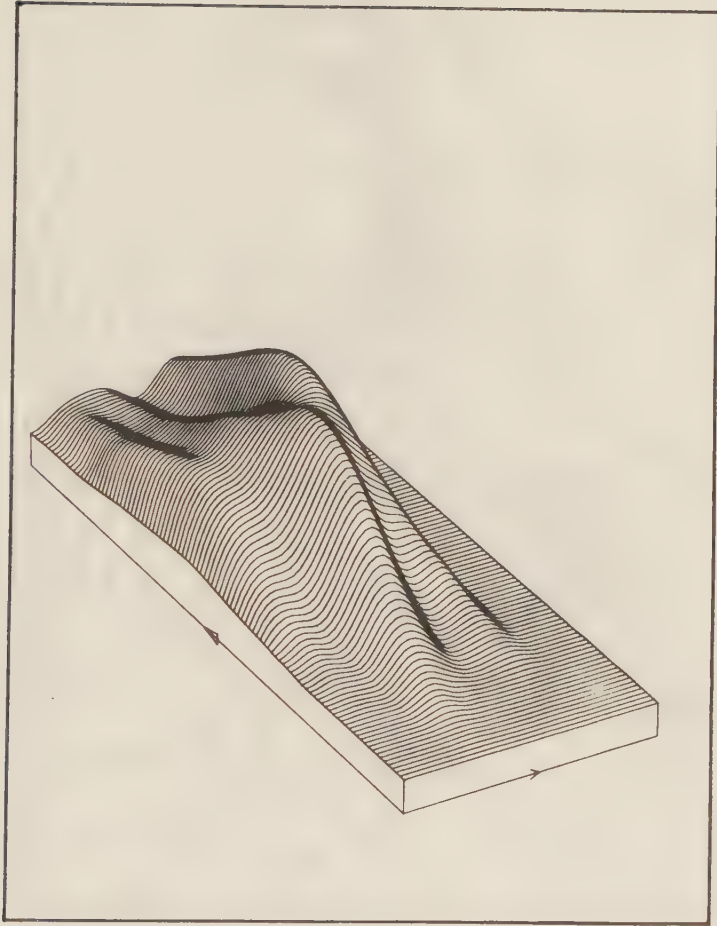


Abb. 28: Äthylenkonzentration über einer Raffinerie in Ingolstadt für Schnitt A (cf. Abb. 25). Die Konzentration wird in vertikaler Richtung aufgetragen

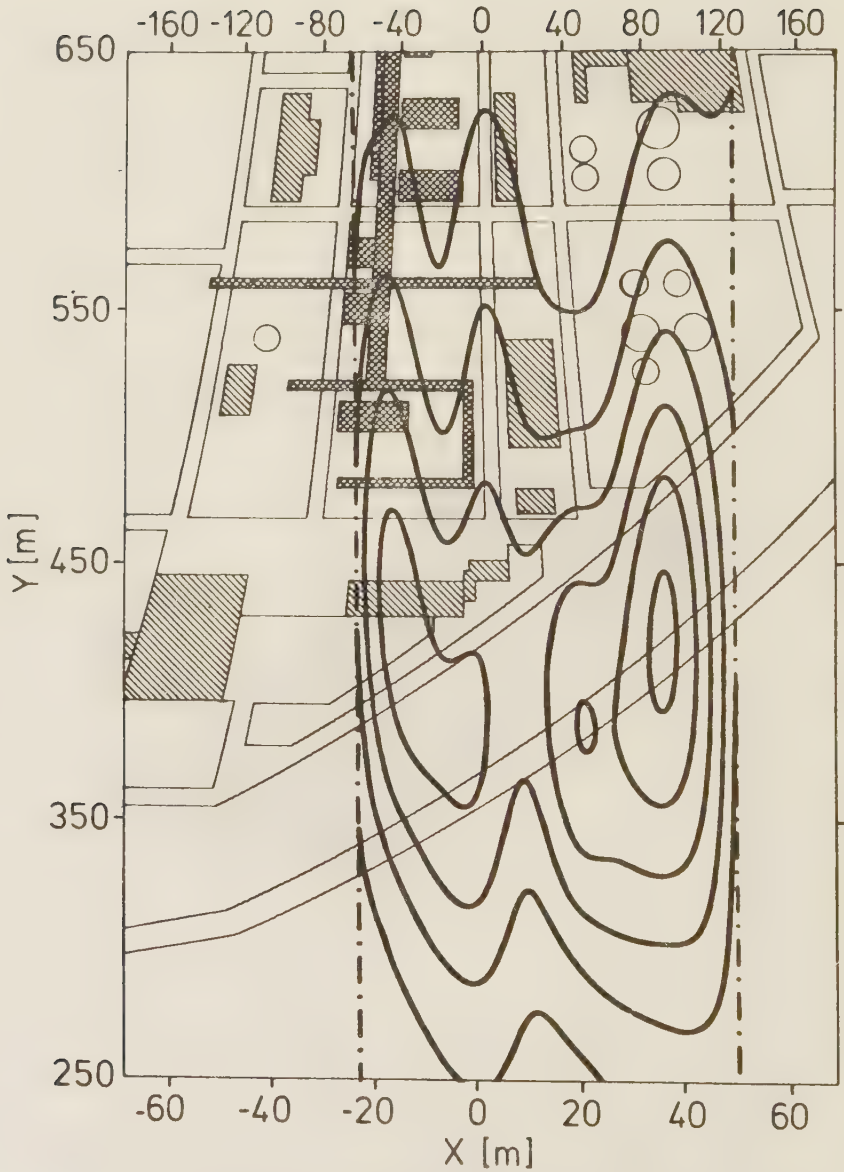


Abb. 29: Lageplan der Raffinerie in Ingolstadt und Isokonzentrationslinien für Äthylen. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 40 ppb, angefangen bei 20 ppb. Schnitt B (cf. Abb. 25)

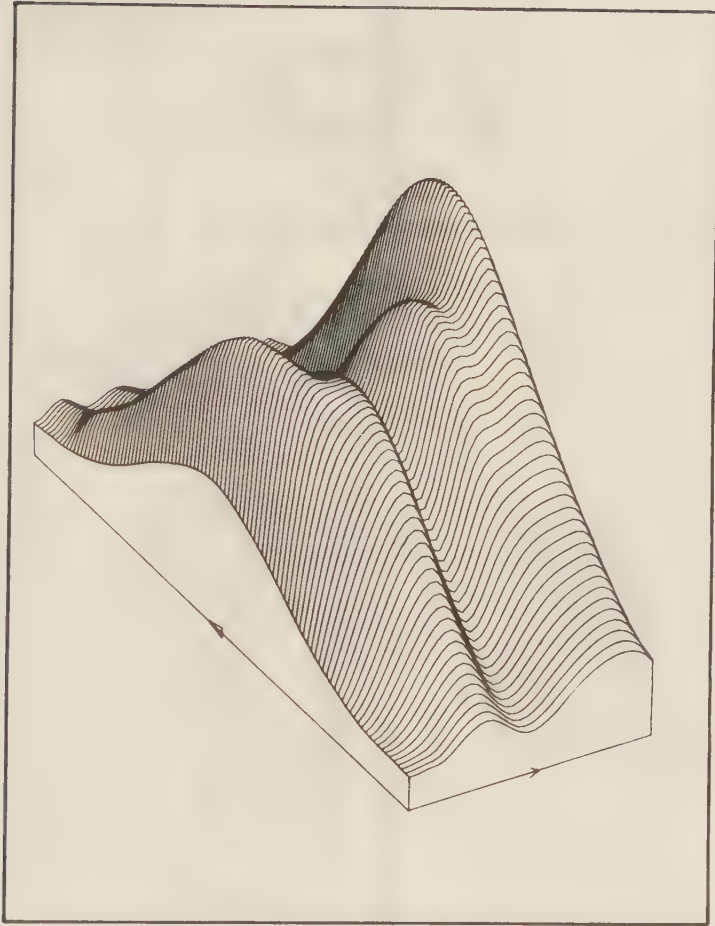


Abb. 30: Äthylenkonzentration über einer Raffinerie in Ingolstadt für Schnitt B (cf. Abb. 25). Die Konzentration wird in vertikaler Richtung aufgetragen



Abb. 31: Lageplan der Raffinerie in Ingolstadt und Isokonzentrationslinien für Äthylen. Der Abstand der Linien beträgt jeweils 20 ppb. Schnitt C (cf. Abb. 25)

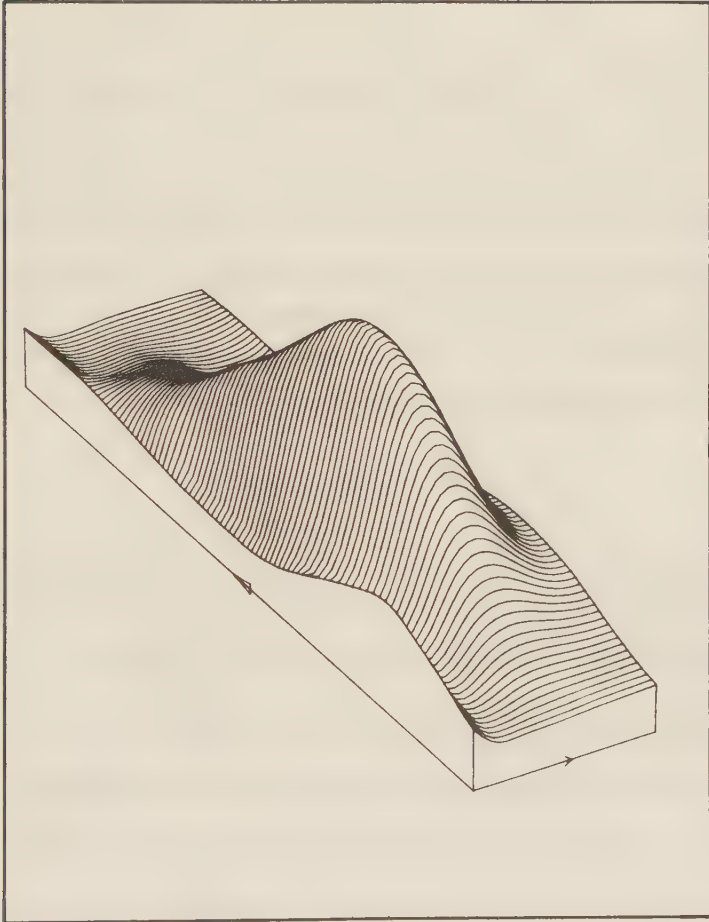


Abb. 32: Äthylenkonzentration über einer Raffinerie in Ingolstadt für Schnitt C (cf. Abb. 25). Die Konzentration wird in vertikaler Richtung aufgetragen

3.3. Meßgenauigkeit

Aufgrund der Lidargleichung ist die Genauigkeit der Konzentrationsangabe bei Benutzung der differentiellen Absorption in erster Linie bestimmt von der Größe der Rückstreuungssignale. Da die Entfernungsintervalle elektronisch genügend genau gemessen werden können, und die Absorptionsquerschnitte bzw. deren Differenz durch Labormessungen vorher genau bekannt sind, können beide als praktisch fehlerfrei betrachtet werden. Unter diesen Annahmen ergibt sich der Fehler $\Delta \bar{n}$ in der Konzentrationsangabe zu

$$\Delta \bar{n} = \frac{1}{2 (\sigma_2 - \sigma_1) (R_2 - R_1)} \frac{\Delta Q}{Q} ,$$

wobei $\frac{\Delta Q}{Q}$ den relativen Fehler bei der zweimaligen Quotientenbildung wiedergibt. Die beiden Quotienten werden aus insgesamt 4 Einzelmeßwerten I , bei zwei Frequenzen und aus zwei Entfernungen, ermittelt. Damit addieren sich die Fehler und der mittlere relative Fehler beträgt $\frac{\Delta Q}{Q} = 2 \frac{\Delta I}{I}$. Werden nun k Einzelmessungen zu einer Gesamtmessung zusammengezogen, so verringert sich der Fehler um den Faktor $\frac{1}{\sqrt{k}}$:

$$\Delta \bar{n} = \frac{1}{(\sigma_2 - \sigma_1) (R_2 - R_1) \sqrt{k}} \frac{\Delta I}{I}$$

Dieser Fehler in der Konzentrationsangabe ist wie die Einzelmeßwerte I entfernungsabhängig. Bei den Wasserdampfmessungen kann man den Fehler in der Entfernung 1 km mit 0.5 Torr ansetzen. Für Äthylen muß man ihn in 500 m zu 10 ppb angeben.

4. Ausbreitung von gasförmigen Substanzen in der Atmosphäre

4.1. Ableitung der Diffusionsgleichung

Seit Anfang unseres Jahrhunderts standen Ausbreitungsvorgänge im Blickpunkt des Interesses der Meteorologen und Geophysiker /31,32,33/. Basierend auf den damaligen grundlegenden Arbeiten wird auch heute noch die Ausbreitung von gasförmigen, nicht reaktiven Substanzen in der Atmosphäre durch die Modelle verschiedener Diffusionsarten beschrieben:

Diffusion durch molekulare Bewegung

Diffusion durch Turbulenz

Diffusion durch Konvektion

Alle diese Diffusionsvorgänge können mathematisch durch den gleichen Typ von Differentialgleichung beschrieben werden, wobei lediglich die Bedeutung der "Diffusionskonstanten" geändert werden muß.

Bei der Ausbreitung einer Gaswolke in der Atmosphäre sind alle diese drei Arten der Diffusion beteiligt, jedoch mit unterschiedlicher Effizienz. Am stärksten wirkt sich die Diffusion durch Konvektion aus. In diesem Falle ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit annähernd die Windgeschwindigkeit. Den nächstgrößten Einfluß zeigt die Diffusion unter Einfluß der Turbulenz; gefolgt von der molekularen Diffusion, die am wenigsten ins Gewicht fällt.

4.1.1. Molekulare und konvektive Diffusion

Diffusion wird üblicherweise /34/ beschrieben durch den Ansatz des Fick'schen Gesetzes, das eine Beziehung zwischen Diffusionsrate, Konzentrationsgradienten und Diffusionskonstanten herstellt:

$$K = - A_M \frac{dc}{dx} \quad 3a$$

mit

A_M : Molekulare Diffusionskonstante

c : Konzentration im Abstand x infolge Diffusion

x : Diffusionsrichtung

K : Massenfluß pro Zeiteinheit durch Einheitsfläche senkrecht zu x

Dieses Fick'sche Gesetz ist eine empirische Aussage und wurde formuliert für kontinuierliche Medien. Gase sind jedoch aus freien Molekülen zusammengesetzt und in diesem Sinne nicht als kontinuierlich anzusehen. Deshalb sei darauf hingewiesen, daß im Falle molekularer Diffusion, die eine Folge zufälliger Molekularbewegung ist, die kinetische Gastheorie und das Fick'sche Gesetz zum gleichen Ergebnis führen. Gleichung (3a) ergibt zusammen mit der Erhaltung der Gesamtmasse bei der Diffusion

$$\frac{\partial c}{\partial t} = - \frac{\partial K}{\partial x} = A_M \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$

Aus der Lösung dieser Differentialgleichung läßt sich A_M bestimmen zu

$$A_M = \frac{\sigma_x^2}{2t}$$

mit σ_x als Standardabweichung.

Wir nehmen zu dieser molekularen Diffusion eine konvektive Komponente mit konstanter Windgeschwindigkeit $u = u(u_x, u_y, u_z)$ hinzu, verallgemeinern auf drei Dimensionen und bekommen dann in der bekannten Schreibweise der Summenkonvention:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_i \frac{\partial c}{\partial x_i} = A_M \frac{\partial^2 c}{\partial x_i^2} \quad 3b$$

4.1.2. Turbulente Diffusion

Das Wesentliche eines turbulenten Flußes sind die zufälligen räumlichen und zeitlichen Fluktuationen von allen Größen, die einen Fluß beschreiben, z.B. Massenverteilung, Geschwindigkeiten und Druck. Die Zufallsbewegungen von Teilchen in einem turbulenten Fluß lassen den Gedanken einer Ähnlichkeit von turbulenter und molekularer Diffusion aufkommen. Daher wird ein analoges Fick'sches Gesetz für die mittlere Konzentration in der turbulenten Diffusion angenommen. Dennoch gibt es zwei wichtige Unterschiede zwischen molekularer und turbulenter Diffusion:

Während der Parameter A_M der molekularen Diffusion ein Skalar ist, tritt bei der Diffusion durch Wirbel dieser Para-

meter als Tensor A_{ij} auf.

Die einzelnen Teilchen bewegen sich in Turbulenzen nicht statistisch unabhängig; vielmehr variieren ihre Geschwindigkeiten kontinuierlich, und es besteht eine Korrelation von Geschwindigkeiten zu bestimmten aufeinanderfolgenden Zeitpunkten, die jedoch nicht zu weit auseinanderliegen dürfen, um die Korrelation nicht zu zerstören.

Zur mathematischen Formulierung nehmen wir Gleichung (3b), teilen aber die Variablen c und u auf in einen Mittelwert $\bar{c}$ bzw. $\bar{u}$ und einen Turbulenzanteil c' bzw. u' :

$$c = \bar{c} + c' \quad \text{und} \quad u_i = \bar{u}_i + u_i'$$

(3b) ergibt dann

$$\frac{\partial}{\partial t} (\bar{c} + c') + (\bar{u}_i + u_i') \frac{\partial (\bar{c} + c')}{\partial x_i} = A_M \frac{\partial^2 (\bar{c} + c')}{\partial x_i^2}$$

Wir führen eine zeitliche Mittelung durch, setzen die Kontinuitätsbedingung $\frac{\partial u_i'}{\partial x_i} = 0$ ein und ersetzen analog zum Fick'schen Gesetz:

$$\overline{c'u'} = - \dot{A}_{ij} \frac{\partial \bar{c}}{\partial x_j}$$

Dies führt nach Wahl geeigneter Koordinatenachsen zu:

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial t} + \bar{u}_i \frac{\partial \bar{c}}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \{ (A_{ii} + A_M) \frac{\partial \bar{c}}{\partial x_i} \}$$

Eine Abschätzung von A_{ii} und A_M ergibt nach Angabe von Sutton /35/ Werte von $>10^3 \text{ cm}^2/\text{s}$ bzw. $10^{-1} \text{ cm}^2/\text{s}$, d.h.

$$A_{ii} \gg A_M.$$

Die Diffusionsgleichung für turbulente Diffusion (mit konvektivem Anteil) lautet somit:

$$\frac{\partial \bar{C}}{\partial t} + \bar{u}_i \frac{\partial \bar{C}}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} (A_{ii} \frac{\partial \bar{C}}{\partial x_i})$$

Bei der Ausbreitung einer Gaswolke hat man es meist mit konstanten Windrichtungen zu tun. Die Konvektionsgeschwindigkeitskomponenten u_2 und u_3 werden zu Null, wenn die Windrichtung parallel zu u_1 angenommen wird. Ebenso kann der Turbulenzeinfluß in u_1 -Richtung gegenüber der Konvektion vernachlässigt werden, so daß die endgültige Diffusionsgleichung folgende Form annimmt:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial y} (A_{yy} \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_{zz} \frac{\partial C}{\partial z})$$

4.2. Lösung der Diffusionsgleichung

Die Emittenten befinden sich bei $t=0$ bzw. $x=0$ in einem homogenen horizontalen Luftstrom. Dieser Wind bestimmt die x -Richtung des Koordinatensystems. z sei die Vertikale und y die Horizontale. Die Windgeschwindigkeit wird räumlich konstant angenommen. Demzufolge verschwinden die Komponenten in y - bzw. z -Richtung. Idealisierend wird weiter vorausge-

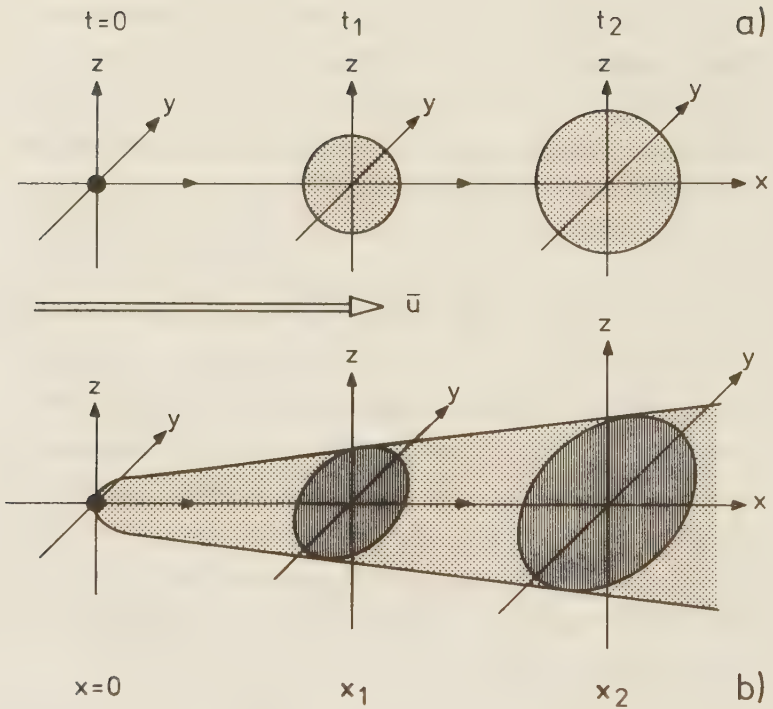


Abb. 33: Ausbreitung einer Wolke bei
 a) pulsierender Emission
 b) kontinuierlicher Emission

setzt, daß sich bei pulsierender Emission die Wolken in einer Geraden parallel zur x -Achse fortbewegen und sich dabei in allen Richtungen des Raumes ausbreiten, während sich bei kontinuierlicher Emission eine um die x -Achse symmetrische Fahne mit Ausbreitung in der y - z -Ebene bildet. Mit diesen Annahmen kann man für die Form der Konzentrations-

verteilung als Lösung der Diffusionsgleichung folgenden Exponentialansatz machen /36/:

a) Für pulsierende Quellen

$$c(x,y,z,t) = A_1 \exp \{-(a|x|^p + b|y|^r + d|z|^s)\}$$

Hierbei sei c die Konzentration (Masse/Volumen) und x,y,z die Koordinaten im mitbewegten System mit Ursprung im Massenschwerpunkt der Wolke. Die Exponenten p,r und s sind aus meteorologischen Gegebenheiten zu eruieren.

b) Für kontinuierliche Quellen

$$c(x,y,z) = A_2 \exp \{-(a|y|^r + b|z|^s)\}$$

Hierbei liegt der Ursprung des Koordinatensystems am Ort des Emittenten. In den Parametern a und b sind die Ausdehnungen in den jeweiligen Richtungen enthalten, während A_2 die Konzentration bei bestimmten Koordinaten wiedergibt:

$$A_2 = c(x,0,0).$$

Die Form des exponentiellen Abfalls der Konzentration in den Richtungen y bzw. z wird von den Exponenten r und s festgelegt.

Zur kompakteren Schreibweise der Lösung führen wir die Varianzen σ_y^2 und σ_z^2 ein, als Maß für die Verschiebung der einzelnen Masseteilchen vom Schwerpunkt weg /36/:

$$\sigma_y^2 = \frac{\int_0^\infty y^2 c(x,y,z) dy}{\int_0^\infty c(x,y,z) dy} \quad \text{bzw.} \quad \sigma_z^2 = \frac{\int_0^\infty z^2 c(x,y,z) dz}{\int_0^\infty c(x,y,z) dz}$$

Mit diesen eben genannten Größen erhält man:

$$c(x,y,z) = \frac{Q}{B \sigma_y \sigma_z} \exp \{ -(\Gamma(3/r)/\Gamma(1/r))^{r/2} (y/\sigma_y)^r - (\Gamma(3/s)/\Gamma(1/s))^{s/2} (z/\sigma_z)^s \} \quad \text{mit} \quad 3c$$

$$\frac{1}{B} = \frac{r s (\Gamma(3/r) \Gamma(3/s))^{1/2}}{4 \bar{u} (\Gamma(1/r) \Gamma(1/s))^{3/2}}$$

Somit ist die Konzentration $c(x,y,z)$ ausgedrückt durch:

r, s : Formkoeffizienten

$\bar{u}$: Mittlere Windgeschwindigkeit

σ_y, σ_z : Standardabweichungen

Q : Emissionsrate

Dabei wurde Gebrauch gemacht von der Beziehung /35/

$$Q = \iint_{-\infty}^{\infty} \bar{u} c \, dy \, dz$$

4.2.1. Festlegung der Exponenten r und s

Die genaue Bestimmung der Exponenten r und s verursacht große Schwierigkeiten, da sie von den meteorologischen Gegebenheiten abhängen. Die tendenzielle Angabe von r und s wurde versucht durch Auswertung von Tracerexperimenten unter verschiedenen Witterungsbedingungen /36,37/. Die daraus abgeleiteten Werte von r schwanken zwischen 3.0 und 1.5. Im statistischen Mittel streben sie jedoch gegen 2 (Gauß-

verteilung). Größere Abweichungen dagegen werden beobachtet bei der Bestimmung von s , also der vertikalen Verteilung. Hierbei spielen Schichtungen in der Atmosphäre, Temperaturgradienten, Emissionshöhe über dem Boden, Bodenrauigkeit und nicht zuletzt meßtechnische Schwierigkeiten eine entscheidende Rolle. In Abb. 34 sind die einzelnen Konzentrationsprofile mit s als Parameter dargestellt.

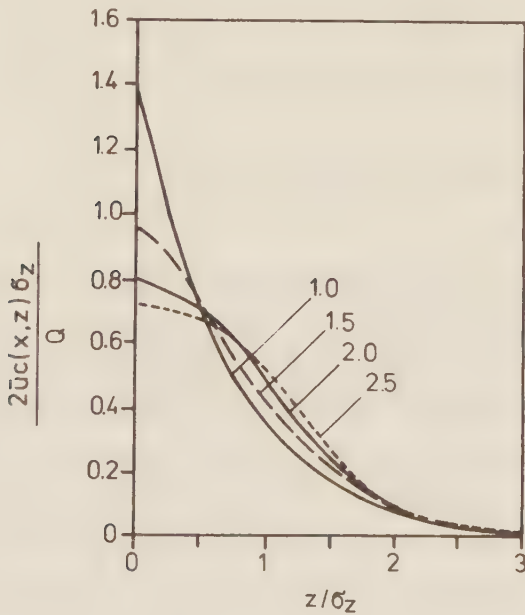


Abb. 34: Ausbreitungsprofile für verschiedene Werte von s nach /36/

Im Abstand σ ist der Unterschied der einzelnen Exponentialverteilungen nicht allzu schwerwiegend und man verwendet deshalb auch bei der vertikalen Ausbreitung eine Gaußkurve, nicht zuletzt auch deswegen, weil mit der Annahme von $r=s=2$ Gleichung (3c) eine einfache Gestalt annimmt und $\sigma_y(x)$ und $\sigma_z(x)$ den meteorologischen Bedingungen sowieso noch angepaßt werden müssen.

4.2.2. Explizite Form der Ausbreitungsgleichung für $r=s=2$

Aus Gleichung (3c) erhalten wir für $r=s=2$

$$c(x,y,z) = \frac{Q}{2\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp \left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2} \right)$$

Für eine Quelle, die nicht auf dem Erdboden, sondern in einer gewissen Höhe H über ihm lokalisiert ist, lassen sich ähnliche Ausbreitungsgleichungen angeben, bei deren Herleitung die Diffusionskonstante wie auch die Windgeschwindigkeit als von der Höhe unabhängig angenommen werden. Es hat sich eingebürgert dieses Problem mit der Modellvorstellung einer Bildquelle (in der Höhe $-H$ unter dem Nullniveau) ähnlich dem Vorgehen in der Elektrostatik zu behandeln, d.h. man stellt sich vor, die Fahne werde bei ihrer Ausbreitung am Boden reflektiert. Diese Vorstellungen führen zu

$$c(x,y,z) = \frac{Q}{2\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp \frac{-y^2}{2\sigma_y^2} \left\{ \exp \left(-\frac{(H-z)^2}{2\sigma_z^2} \right) + \exp \left(-\frac{(H+z)^2}{2\sigma_z^2} \right) \right\}$$

Da in der Herleitung, bzw. in den Idealisierungen hierzu, breiter Raum für willkürliche Annahmen besteht, ist es von vordringlicher Wichtigkeit, die Ergebnisse experimentell zu überprüfen und so das Verfahren zu legitimieren.

4.3. Einteilung der Wetterlagen in Ausbreitungsklassen

In der Literatur wurden verschiedene Vorschläge gemacht, die Gestalt der Ausbreitungskurven zu korrigieren, d.h. die verschiedenen meteorologischen Gegebenheiten miteinzubeziehen /36,37/. Für die meisten Anwendungen kommt es darauf an, zu entscheiden, ob die Verteilung eine Kurve vom Gauß'schen Typ ist, oder ob sie eine einfache Exponentialfunktion ist /36/. Der Erfolg von expliziten Diffusionsformeln hängt weitgehend von der richtigen Wahl der r - und s -Werte und der Kenntnis der Standardabweichungen σ_y und σ_z ab. Es ist daher das Bestreben, aus dem Datenmaterial von synoptischen Beobachtungen die relevanten Größen herauszufinden. Solche synoptischen Meßprogramme erstrecken sich gewöhnlich auf folgende Angaben:

Windgeschwindigkeit und Windrichtung am

Boden (meist in 10 m Höhe)

Ausmaß und Art der Bewölkung

Variation von Wind und Temperatur mit der Höhe

Lufttemperatur (in 1 m Höhe)

Luftdruckverteilung am Boden

Sonnenscheindauer

Intensität der Sonneneinstrahlung

Auf der Basis solcher Daten wurde von Pasquill /38/ eine Einteilung von Wetterlagen in Ausbreitungsklassen vorgenommen, die die Abschätzung von vertikaler und horizontaler Ausbreitung erleichtern sollen. Dieses Schema wird heute allgemein als Grundlage anerkannt (Modifikationen wurden von Klug /39/ vorgeschlagen).

Windgeschwindigkeit in 10 m Höhe	Einstrahlung			Bedeckung nachts	
(m/sec)	stark	mittel	schwach	$\geq 4/8$	$\leq 3/8$
<2	A	A-B	B	-	-
2-3	A-B	B	C	E	F
3-5	B	B-C	C	D	E
5-6	C	C-D	D	D	D
>6	C	D	D	D	D

Tabelle 9 : Ausbreitungsklassen nach Pasquill /38/

Pasquill wollte dieses Schema und die daraus abgeleiteten Ausbreitungsparameter als grobe Abschätzungen angesehen wissen, die im konkreten Fall der empirischen Nachprüfung bedürfen. Dies ist mit den bisherigen Methoden der klimatologischen Forschung recht schwierig durchzuführen, da für eine Überprüfung der Ausbreitungsparameter eine dreidimensionale (entsprechend engmaschige) Konzentrationsverteilung bekannt sein müßte. Dies ist jedoch beim heutigen Stand der Meßtechnik nur mit einem Lidarsystem, wie es hier beschrieben wurde, möglich.

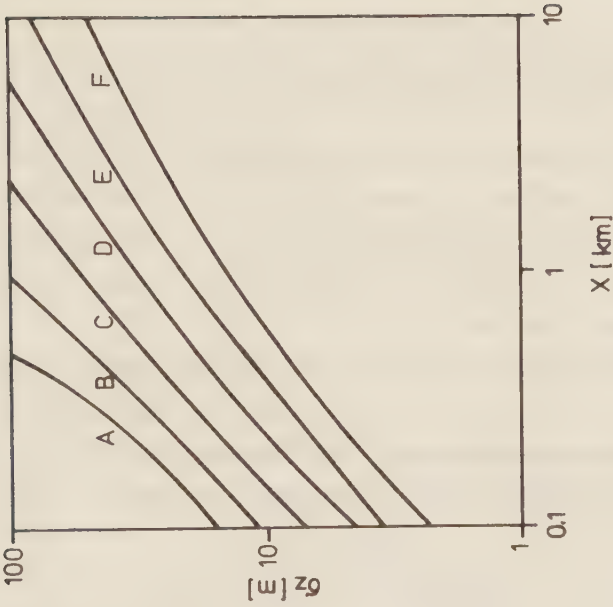


Abb. 36: Vertikaler Ausbreitungsparameter σ_z in Abhängigkeit von der Entfernung für die einzelnen Ausbreitungsklassen nach /38/

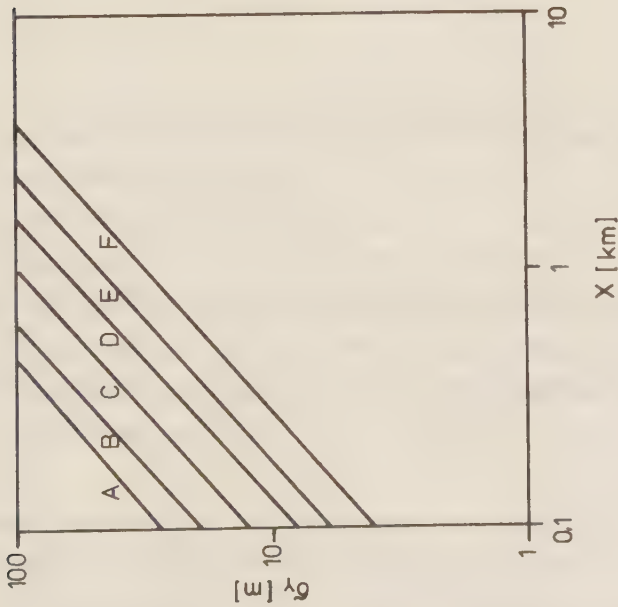


Abb. 35: Horizontaler Ausbreitungsparameter σ_y in Abhängigkeit von der Entfernung für die einzelnen Ausbreitungsklassen nach /38/

5. Auswertung von Ausbreitungsprofilen

5.1. Bestimmung der Emissionsrate Q einer Quelle

Wenn sich nach der Emission eines Gases aus einer Quelle eine Fahne ausbildet, so kann man prinzipiell auf zwei verschiedene Arten die Emissionsrate bestimmen, wenn sowohl die Konzentrationsverteilung wie auch die Windgeschwindigkeit bekannt sind /40/:

Eine erste Möglichkeit besteht darin, daß man von der Tatsache Gebrauch macht, daß man aus der Ausbreitungsgleichung den funktionalen Zusammenhang von Q (Emissionsrate), $\bar{u}$ (Windgeschwindigkeit) und c (Konzentration) kennt:

$$c(x,y,z) = \frac{Q}{2\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp \left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2} \right)$$

Da $c(x,y,z)$ bekannt ist, lassen sich bei x_1 (cf. Abb. 33) die Standardabweichungen σ_y und σ_z wie auch der Massenschwerpunkt $S(x_1, y_S, z_S)$ errechnen. Aus $c(x_1, y_S, z_S)$ und der gemittelten, in y- bzw. z-Richtung nicht variierenden Windgeschwindigkeit $\bar{u}$ ergibt sich sofort die Emissionsrate Q. Wegen der früher genannten Annahmen und Willkürlichkeiten bei der Ableitung der Ausbreitungsgleichung, erscheint uns diese Methode der Bestimmung der Emissionsrate mathematisch zwar möglich, physikalisch dagegen mit zu großer Unsicherheit behaftet.

Für die zweite Art, die Emissionsrate Q zu bestimmen, führt man einen vertikalen Schnitt in der y-z-Ebene, also senkrecht zur Windrichtung x, durch die Fahne aus. Dann kann man

folgern, daß alle Teilchen sich mit der Geschwindigkeit $\bar{u}$ durch diese Ebene hindurch bewegen.

Aufgrund der Kenntnis von $c(x_1, y, z)$ erhalten wir die Emissionsrate Q :

$$Q = \iint_{-\infty}^{\infty} \bar{u} c(x_1, y, z) dy dz$$

(Erhaltungsgleichung der einzelnen nichtreaktiven Teilchen in der Fahne)

Will man hierbei den Fehler von Q möglichst gering halten, muß das Netz der Meßpunkte sehr dicht ausgelegt werden, damit

$$\iint_{-\infty}^{\infty} \bar{u} c dy dz \approx \Delta F \sum_{i,j} \bar{u} c_{ij}$$

mit ΔF als Flächenelement und $c_{ij} = c(x_1, y_i, z_j)$ wird.

5.2. Berechnung der Ausbreitungsparameter σ_y, σ_z, r und s aus Meßdaten

Da $c(x_1, y, z)$ für ein bestimmtes x_1 bekannt ist, kann man die Konzentrationsverteilung in der y - z -Ebene benutzen, um aus den y_k bzw. z_k , die aus einem rechteckigen Gitter von diskreten Meßpunkten entnommen werden, den Schwerpunkt der Konzentration zu ermitteln:

$$y_s = \frac{\sum_{i=1}^{n_y} y_i \sum_{j=1}^{n_z} c_{ij}}{\sum_{i=1}^{n_y} \sum_{j=1}^{n_z} c_{ij}} \quad \text{und} \quad z_s = \frac{\sum_{j=1}^{n_z} z_j \sum_{i=1}^{n_y} c_{ij}}{\sum_{i=1}^{n_y} \sum_{j=1}^{n_z} c_{ij}}$$

Mit diesen Schwerpunktskoordinaten (z_S, y_S) wird ein neuer Koordinatenursprung festgelegt. In diesem System werden Schnitte durch die Achsen in der x-y-Ebene und der x-z-Ebene ausgeführt, die die Konzentrationswerte entlang der Achsen y und z bestimmen. Durch die mathematische Methode der kleinsten Quadrate werden die Konzentrationsverläufe durch Exponentialfunktionen (cf. Kap. 4.2.) angenähert. Dieses Verfahren läßt eine direkte Beurteilung der Rechtmäßigkeit der Annahme einer Gaußverteilung zu, bzw. gibt die Parameter r und s aus einem experimentellen Befund an. Dies ist bisher das einzige Verfahren, um aus in situ-Messungen direkt das Profil der Konzentrationsverteilung und daraus die entsprechenden Ausbreitungsparameter zu berechnen.

Die Standardabweichungen σ_y und σ_z , eingeführt aufgrund der statistischen Theorie der turbulenten Diffusion, sind ebenfalls als Ergebnis von dreidimensionalen Konzentrationsprofilen aus Meßdaten ableitbar /35/:

$$\sigma_y^2 = \frac{\int_0^\infty y^2 c(x_1, y, 0) dy}{\int_0^\infty c(x_1, y, 0) dy} \quad \text{bzw.} \quad \sigma_z^2 = \frac{\int_0^\infty z^2 c(x_1, 0, z) dz}{\int_0^\infty c(x_1, 0, z) dz}$$

6. Ergebnisse der Ausbreitungsmessungen in der Atmosphäre

Zur Bestimmung der Ausbreitungsparameter σ_y, σ_z, r, s und Q wurde, wie bereits oben erwähnt, ein vertikaler Schnitt durch die Schadstofffahne senkrecht zur Windrichtung gelegt. In dieser Schnittfläche wurde wie bei den Horizontalschnitten die Konzentration in jedem Punkte durch mathematische Verdichtung bestimmt. Das sich ergebende Isokonzentrationslinienfeld ist in Abb. 37 dargestellt. Die Linien bezeichnen die Lage der Konzentrationswerte bei 20, 40, 60 und 80 ppb Äthylen. Gemäß den Überlegungen von Kap. 5.2. wurde der Schwerpunkt S der Konzentration in der Schnittebene berechnet und zum neuen Koordinatenursprung gemacht. Durch diesen neuen Nullpunkt wurden in y - und z -Richtung Schnitte gelegt, um die Konzentrationsverläufe in beiden Richtungen zu bekommen. Diese beiden Konzentrationsprofile sind in Abb. 39 und Abb. 40 zu sehen. In diese Profile wurden dann nach dem in Kap. 5.2. beschriebenen Verfahren Anpassungskurven gelegt. Aus diesem Fit ergaben sich für c folgende Funktionen:

$$c(x_1, y, 0) = 85.4 \exp(-6 \cdot 10^{-5} |y|^{2.0})$$

$$c(x_1, 0, z) = 85.4 \exp(-1.4 \cdot 10^{-3} |z|^{1.7})$$

Hieraus folgt für die Ausbreitungsparameter:

$$r = 2.0, s = 1.7, \sigma_y = 91.3 \text{ m}, \sigma_z = 18.9 \text{ m}.$$

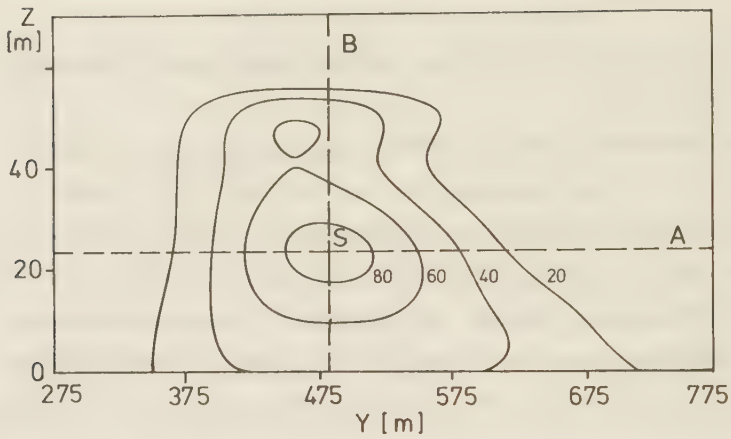


Abb. 37: Isokonzentrationslinien und Lage des Schwerpunktes für den vertikalen Schnitt. Die Konzentrationswerte beziehen sich auf ppb Äthylen

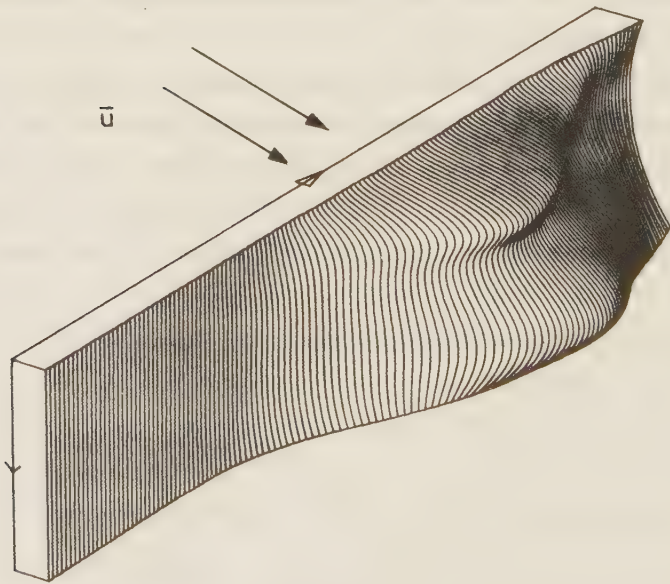


Abb. 38: Äthylenkonzentration für den vertikalen Schnitt mit eingezeichneter Windrichtung

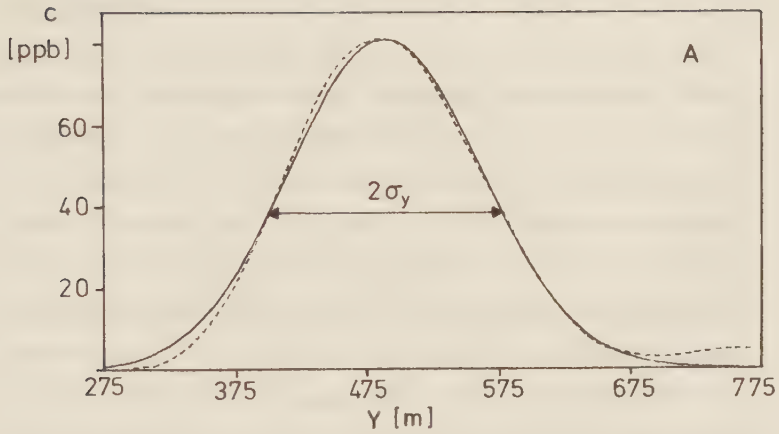


Abb. 39: Konzentrationsprofil des Schnittes A in der x-y-Ebene durch den Schwerpunkt (cf. Abb. 37)

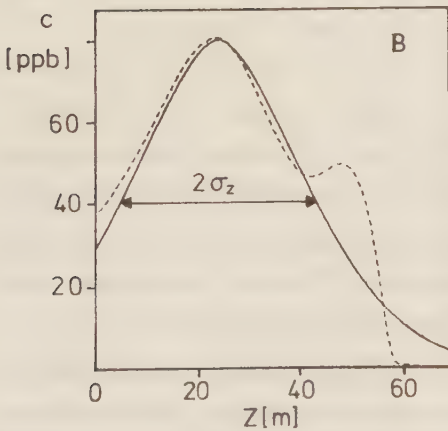


Abb. 40: Konzentrationsprofil des Schnittes B in der x-z-Ebene durch den Schwerpunkt (cf. Abb. 37)

Diese aus Messungen berechneten Werte der Ausbreitungsparameter bestätigen, daß es zulässig ist, für die Ausbreitungsprofile einer Fahne senkrecht zur Windrichtung eine Gaußverteilung anzunehmen ($r=s=2$). Es bestätigte sich auch die Erwartung, daß die Ausbreitung in vertikaler Richtung (σ_z) langsamer erfolgt als in der horizontalen. Dies ist vor allem auf die Schichtungen in der Atmosphäre zurückzuführen, wodurch eine Durchmischung der verschiedenen Luftgebiete erschwert wird. Desweiteren ist im vertikalen Konzentrationsprofil aus Abb. 40 eine Abweichung von einer Gaußkurve zu beobachten. Das zweite Maximum in etwa 48 m Höhe deutet auf eine zweite Emissionsquelle hin, die in einer anderen Höhe als die Hauptquelle emittiert. Da die Messungen sehr nahe an den Quellen gemacht wurden, konnten diese beiden Schadstofffahnen sich noch nicht zu einer einzigen vermischen und erlauben damit den Schluß auf zwei Emittenten.

Neben der Bestimmung der Ausbreitungsparameter wurde nach der Methode, die in Kap. 5.1. beschrieben wurde, die Emissionsrate berechnet. Es wurde dabei im Vertikalschnitt über alle Konzentrationswerte summiert und mit dem entsprechenden Flächenelement von 1 m^2 multipliziert. Dies ergab ein Konzentrationsvolumen (Konzentration $\cdot$ Fläche) von $0.75 \cdot 10^5 \text{ (ppb} \cdot \text{m}^2\text{)}$. Bei einer angenommenen Windgeschwindigkeit $\bar{u}$ von 3 m/s ergibt dies eine Emissionsrate von 0.95 g/s, oder bei kontinuierlicher Emission einen Äthylenausstoß in die Atmosphäre von 243 kg pro Tag.

7. Ausblick

Die beiden Meßkampagnen in Meppen und in Ingolstadt haben gezeigt, daß sich ein DIAL-Gerät auch im praktischen Feldeinsatz (selbst bei Temperaturen unter 0°C) bewährt. Mit einem Lidarsystem, wie es hier beschrieben wurde, ist man nun in der Lage, die für Überwachungs- und Überprüfungsaufgaben notwendigen Daten über einer größeren Fläche (im Umkreis bis zu 2,5 km) zu ermitteln. Die Möglichkeit, aus diesen Meßwerten die Immission in dem entsprechenden Gebiet errechnen zu können, kann einen unschätzbaren Beitrag zur Gesundheit der Menschen und zum Schutz der Natur bringen. Neben der Immissionserfassung können Emittenten aufgespürt und auch die Emissionsrate, zusammen mit synoptischen Messungen, bestimmt werden.

Darüberhinaus ist man in der Lage anhand von Messungen Vorhersagen über Ausbreitungsvorgänge in der Atmosphäre nachzuprüfen und die zugrundeliegenden Modelle zu modifizieren bzw. zu verfeinern.

Selbstverständlich läßt sich, wie oben ausgeführt, die inzwischen bewährte Methode der differentiellen Absorption auch auf andere Schadstoffe anwenden, wenngleich auch hier zugegeben werden muß, daß die Forderung der zufälligen Koinzidenz von Absorptionslinien der Schadstoffe mit den emittierten Linien eines CO_2 -Lasers die Anzahl der nachweisbaren Substanzen einschränkt. Gerade aber neuere Technologien in der Entwicklung von Hochdruck- CO_2 -Lasern stellen die Lösung dieses Problems in Aussicht, da es bereits

im 9,4 und 10,4 μm Band kontinuierlich durchstimmbare CO_2 -Laser mit etwa 100 mJ Pulsenergie gibt (leider ist derzeit noch keine Repetitionsrate > 2 Hz möglich). Nach einer Steigerung der Mobilität durch die Anschaffung eines Meßgerädeträgers, der den leidigen Ein- und Ausbau der Apparatur in bzw. aus dem Möbelwagen hinfällig macht, kann man davon ausgehen, daß in Zukunft Überwachungs- und Überprüfungsaufgaben mit einem DIAL-Gerät nach dem hier beschriebenen Verfahren durchgeführt werden können.

Literaturverzeichnis

- 1 K. W. Rothe, H. Walther, Remote Sensing Using Tunable Lasers in: A. Mooradian, T. Jaeger, P. Stokseth: Tunable Lasers and Applications, Proceedings of the Leon Conference, Norway, 1976 Springer Verlag, Berlin (1976)
- 2 R. L. Byer, Opt. Quant. Electron. 7, 147 (1975)
- 3 A. Tönnißen, Dissertation, München (1977)
- 4 R. M. Measures, App. Opt. 16, 1092 (1977)
- 5 K. W. Rothe, Dissertation, Bonn (1975)
- 6 W. Schnell, G. Fischer, Appl. Opt. 14, 2058 (1975)
- 7 B. D. Green, J. I. Steinfeld, Appl. Opt. 15, 1688 (1976)
- 8 J. Boscher, BMFT Contract 01 TL 026-AK/RT/WRT 2074
- 9 L. B. Kreuzer, N. D. Kenyon, C. K. N. Patel, Science 177, 347 (1972)
- 10 E. D. Hinkley: Laser Monitoring of the Atmosphere, Springer Verlag, Berlin (1976)
- 11 J. Shewchun, B. K. Garside, E. A. Ballik, C. C. Y. Kwan, M. M. Elsherbiny, G. Hogenkamp, A. Kazandjian, Appl. Opt. 15, 340 (1976)
- 12 M. S. Shumate, R. T. Menzies, J. S. Margolis, L.-G. Rosengren, Appl. Opt. 15, 2480 (1976)
- 13 D. C. Smith, J. Appl. Phys. 41, 4501 (1970)

- 14 N. A. Generalov, V. P. Zimakov, G. I. Kozlov, V. A. Masykov, Yu. P. Raize, Sov. Phys. JETP Lett. 11, 222 (1970)
- 15 E. Yablonovitch, Phys. Rev. Lett. 32, 1101 (1974)
- 16 G. McLelland, S. D. Smith, Opt. Comm. 27, 101 (1978)
- 17 E. Yablonovitch, Appl. Phys. Lett. 23, 121 (1973)
- 18 B. Gellert, Pulsschneidesystem zu einem TEA-CO₂-Laser, Ruhr-Universität Bochum, 76 - N3 - 010 (1976)
- 19 K. W. Rothe, Privatmitteilung
- 20 S. Sutton, RD/L/N 170/78, CERL, (1979)
- 21 R. A. McClatchey, W. S. Benedict, S. A. Clough, D. E. Burch, R. F. Calfee, K. Fox, L. S. Rothman, J. S. Garing, AFRCL Atmospheric Absorption Line Parameters Compilation, AFRCL - TR - 73 - 0096, ERP 434 (1973)
- 22 P. A. Leighton: Photochemistry of Air Pollution, Academic Press, New York, N. Y. (1961)
- 23 K. L. Demerjian, J. A. Kerr, J. G. Calvert, Adv. Environ. Sci. Technol. 4, 1 (1974)
- 24 M. J. Molina, F. S. Rowland, Nature 249, 810 (1974)
- 25 T. Herron, R. E. Huie, J. Am. Chem. Soc. 99, 5430 (1977)
- 26 J. P. Jesson, Angew. Chem. 89, 507 (1977)
- 27 Infrared Spectra, Sadtler Research Laboratories, Inc. Philadelphia, Penns.

- 28 R. R. Patty, G. M. Russwurm, W. A. McClenny, D. R. Morgan
Appl. Opt. 13, 2850 (1974)
- 29 A. Mayer, J. Comera, H. Charpentier, C. Jaussaud,
Appl. Opt. 17, 391 (1978)
- 30 E. R. Murray, J. E. Van der Laan, Appl. Opt. 17, 814 (1978)
- 31 G. I. Taylor, Phil. Trans., A, 215, 1 (1915)
- 32 L. F. Richardson: Weather Prediction, Cambridge (1922)
- 33 W. Schmidt: Der Massenaustausch in freier Luft, 7 in:
Probleme der kosmischen Physik
- 34 A. J. Raudkivi, R. A. Callander: Advanced Fluid Mechanics,
Edw. Arnold, London (1975)
- 35 O. G. Sutton: Proceedings of the Royal Society, Series A,
135, 143 (1974)
- 36 F. Pasquill: Atmospheric Diffusion, N. Y., Van Nostrand (1974)
- 37 W. Klug, Staub 24, 396 (1964)
- 38 F. Pasquill, The estimation of the Dispersion of windborne
material. Met. Magaz. 90, 33 (1961)
- 39 W. Klug, Staub - Reinhalt. Luft 29, 143 (1969)
- 40 D. Paffrath, Staub - Reinhalt. Luft 38, 105 (1978)

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Walther für seinen persönlichen Einsatz bei der Projektierung der Arbeit und für die vielen Anregungen während ihrer Durchführung.

Danken möchte ich im besonderen Herrn Dr. K. W. Rothe. Seine Zusammenarbeit und Menschlichkeit bedeuteten mir viel.

Allen Mitgliedern und Gästen am Lehrstuhl Prof. Walther bin ich ehrlich dankbar für die anregenden Diskussionen und die gute menschliche Atmosphäre im Institut.

Die umfangreichen, oftmals schwierigen Arbeiten zum Aufbau der Lidarapparatur wurden in der Mechanischen Werkstätte der Sektion Physik in Garching fachmännisch und prompt durchgeführt. Herzlichen Dank.

Dankbar hinweisen möchte ich auf die vertrauensvolle Zusammenarbeit mit dem Landwirtsehepaar Johann und Maria Ott, die die Bewachung und Stromversorgung bei den Messungen in Ingolstadt übernommen haben.

Lebenslauf

Name	Walter Baumer
Geburtsdatum	11.12.1943
Geburtsort	Straubing
Staatsangehörigkeit	deutsch
Eltern	Max Baumer, Saatzuchttechniker Christina Baumer, geb. Ostermeier

Ausbildungsweg

1949 - 1954	Volksschule
1954 - 1963	Hum. Gymnasium in Ingolstadt
1963 - 1966	Studium der Philosophie in Gars und Sousceyrac (Frankreich)
1966 - 1970	Studium der Theologie in Gars
1970 - 1975	Studium der Physik an der Ludwig- Maximilians-Universität in München
1975 - 1979	Wissensch. Angestellter an der Sek- tion Physik der Ludwig-Maximilians- Universität in München

Offsetdruck
GmbH & Co. KG.

86 Bamberg Hohe-Kreuz-Str. 9b

M. SCHADEL

• Tel. 0951/54414 • 58461 •